

INSTITUT NON LINEAIRE DE NICE

UNIVERSITÉ DE NICE SOPHIA-ANTIPOLIS - UFR Sciences

THÈSE

présentée par

Nicolas MERCADIER

pour obtenir le titre de

DOCTEUR EN SCIENCES

DE L'UNIVERSITÉ DE NICE SOPHIA-ANTIPOLIS.

Spécialité : **PHYSIQUE**

DIFFUSION RÉSONANTE DE LA LUMIÈRE LASER ALÉATOIRE À ATOMES FROIDS ET VOLS DE LÉVY DES PHOTONS

Thèse soutenue le 14 Octobre 2011 devant le jury composé de :

| | |
|-------------------------|--------------------|
| M. Christian VANNESTE | Président |
| M. Rémi CARMINATI | Rapporteur |
| M. Jean-Claude GARREAU | Rapporteur |
| M. Philippe ADAM | Examineur |
| M. Eduardo PEREIRA | Examineur |
| M. Matthias WEIDEMÜLLER | Examineur |
| M. Robin KAISER | Directeur de thèse |

*Le hasard est le plus grand romancier du monde ;
pour être fécond, il n'y a qu'à l'étudier.*

Honoré de Balzac
La Comédie Humaine, Avant-Propos

Remerciements

Grâce à tous ceux qui m'ont entourés, les trois années que j'ai passées en thèse à l'INLN ont été infiniment riches d'échanges. Réussir à lister tous ceux qui ont pris part aux projets présentés dans ce manuscrit ou contribué, de près ou de loin, à leur réussite, constitue un exercice de mémoire intéressant ; remercier justement chacun est sans doute une performance réservée aux meilleurs équilibristes. Avant tout, je remercie donc le lecteur de sa bienveillance, et j'espère qu'il trouvera ici les mots qu'il peut attendre.

Ce doctorat a commencé dès décembre 2007, bien avant sa date de début officielle, par ma rencontre avec Robin Kaiser. L'originalité des projets qu'il m'a présentés, mais surtout l'engouement pour la physique, l'énergie et la vivacité dont il a fait preuve m'ont donné l'envie de travailler avec lui. Cet enthousiasme débordant, il l'a toujours gardé et a su l'utiliser pour animer l'équipe dont j'ai fait partie ; il m'a accordé, je crois, sa confiance, m'a donné l'autonomie nécessaire pour conduire un projet de thèse et apprendre le travail de chercheur, tout en étant toujours là, soutien solide lorsque j'en ressentais le besoin. Robin, merci à toi !

Le travail présenté dans ce manuscrit est celui de toute l'équipe de thésards et post-docs de notre chère manip "Rubidium 1". Parmi ceux dont j'ai le plus appris durant cette thèse, figure sans aucun doute le jeune post-doc qui m'a encadré à mes débuts : William Guerin. Merci William du support constant que tu m'as apporté durant ta présence à l'INLN et bien après ton départ, et qui t'a amené, par exemple, à assurer une relecture des plus approfondies de ce manuscrit (quel dévouement !). Merci à Franck, qui a eu la délicate tâche de débroussailler le projet laser aléatoire à son démarrage, Vera, et sa détermination implacable, et enfin à Quentin, à qui revient la délicate tâche de poursuivre le projet. Travailler avec toi au cours de cette dernière année a été un réel plaisir. Ta bonne humeur constante est venue à bout avec facilité des petits déboires expérimentaux quotidiens, des caprices du vide les plus mystérieux, et je suis certain qu'elle t'amènera bien plus loin encore.

Hors du labo aussi, bien des gens ont contribué au développement scientifique des projets présentés dans ce manuscrit. Acteur du projet laser aléatoire, Rémi Carminati a surtout été celui grâce à qui j'ai rejoins l'INLN, celui qui a su, alors que j'étais l'un de ses étudiants en master, me pointer du doigt la bonne direction. Il m'a ensuite, durant

ma thèse, accueilli dans son équipe pour me former aux problématiques de la diffusion multiple et me faire bénéficier de l'expertise de tout un groupe. Cela a été, je le crois sincèrement, une étape clé de ma thèse. A Rémi, à Romain Pierrat qui a assuré cette formation avec une gentillesse et une patience inégalables, je suis infiniment reconnaissant. Bien d'autres ont apporté des pierres significatives aux projets présentés dans cette thèse. Merci à Martine Chevrollier, Eduardo Pereira, Selma Gezhali, partisans des vols de Lévy ; à Sergei Skipetrov, Arthur Goetschy, Luis Froufe-Pérez, Christian Vanneste, Patrick Sebbah, Jonathan Andreasen, fans du laser aléatoire.

Bien sûr, parmi les gens qui ont contribué à l'élaboration scientifique de cette thèse, certains tiennent une place à part : les membres de mon jury. Je veux leur exprimer ici toute ma gratitude : à Christian Vanneste, qui m'a fait l'honneur de présider mon jury ; à Jean-Claude Garreau et Rémi Carminati (encore lui !) qui ont accepté la lourde tâche d'être rapporteurs de ce manuscrit ; à Philippe Adam, qui a eu la gentillesse d'assurer le suivi de ma thèse pour la DGA ; enfin, à Matthias Weidemüller et Eduardo Pereira, qui sont venus de loin pour assister à ma soutenance et ont accepté d'écouter une présentation en français.

Retour au labo. Il ne sont pas mis en avant dans les publications ou les conférences, mais bien des gens y oeuvrent, absolument indispensables au bon déroulement d'une thèse et à fortiori d'un projet expérimental. Je tiens à remercier ici les équipes techniques et administratives de l'INLN. Merci en particulier à Nathalie, Isabelle, François-Régis, Jean-Daniel et Jean-Charles pour leur gentillesse, leur dévouement et leur disponibilité. Enfin, merci à Jorge Tredicce, directeur de l'INLN, de m'avoir accueilli au laboratoire.

L'émulation scientifique, la vie, l'enthousiasme qui règnent dans un labo sont autant d'éléments inestimables dans le "dur" parcours d'un thésard. Merci aux "permanents" qui y contribuent activement, en particulier Stéphane, Mario, Patrizia, Guillaume, Christian, toujours ouverts à la discussion. Et puis bien sûr, merci aux thésards et post-docs de l'INLN. Nombre d'entre eux sont devenus, je crois, des amis, et nos activités ensemble se sont étendues au delà des murs du labo. Je cède à la tentation de citer quelques unes des plus mémorables : la rando au crapaud, celle à Gialorgues, l'escalade dans les calanques, le canyon de la Maglia, le ski de rando au mont rouge... Pour tout ça et plus encore, merci à Marta, Julien, Maryvonne, Riadh, Florence, Patrice, Marianne, Axel, Johan, Louis, Laurent, Matthieu, Alessio, Giovanni. Certains méritent une mention spéciale. Margherita, qui m'a supporté dans son bureau pendant plus de deux ans. Et surtout Tom et JF : nous avons commencé ensemble nos thèses et je crois, traversé ensemble les mêmes étapes. Mener ma thèse à vos côtés a été une grande chance.

Une autre chance que j'ai eu durant cette thèse a été de pouvoir enseigner. Cela fut pour moi un réel plaisir et un facteur d'épanouissement important. Je tiens à remercier ici Olivier Legrand, Médéric Argentina, Eric Aristidi et Massimo Giudici qui m'en ont donné la possibilité et m'ont accordé leur confiance ; et Patrizia Vignolo, ma tutrice

de monitorat, qui a su me guider dans ma découverte des multiples facettes du métier d'enseignant.

Enfin, je ne peux terminer cette page sans remercier mes amis et ma famille qui, durant tout mon parcours avant et durant cette thèse de doctorat, m'ont accordé un soutien inappréciable. Merci avant tout à mes parents, Colette et Jean-Claude, toujours présents et grâce à qui j'ai pu poursuivre mes rêves. A mes frères et soeurs, Jacques et Sandrine - venus de loin pour assister à ma soutenance.

Merci enfin à tous ceux qui, de près ou de loin, ont contribué à la réussite de cette thèse.

Table des matières

| | |
|--|-----------|
| Introduction | 13 |
| Première Partie : Ingrédients d'un modèle de transport | 19 |
| I Modèles de transport en milieux diffusants | 23 |
| I.1 Equation de Transfert Radiatif (ETR) | 23 |
| I.1.1 Définition de la luminance | 23 |
| I.1.2 Propriétés locales d'un milieu diffusant | 24 |
| I.1.3 L'ETR : un bilan local d'énergie | 29 |
| I.2 Le modèle diffusif | 30 |
| I.2.1 Marches aléatoires et équation de la diffusion | 31 |
| I.2.2 Libre parcours moyen de diffusion et longueur de transport | 33 |
| I.2.3 Equation de la diffusion : démonstration à partir de l'ETR | 35 |
| I.2.4 Coefficient de diffusion et vitesse de l'énergie | 38 |
| I.3 Diffusion dans une sphère en présence de gain | 39 |
| I.3.1 Solution en régime instationnaire : la bombe photonique | 39 |
| I.3.2 Régime stationnaire en présence de sources | 43 |
| I.4 Conclusion | 44 |
| II Propriétés optiques d'un atome | 47 |
| II.1 Equations de Bloch Optiques (EBO) pour un atome à deux niveaux | 47 |
| II.1.1 Atome soumis à une onde plane monochromatique quasi-résonante | 50 |
| II.1.2 Atome soumis à une superposition d'ondes planes - Matrices de Floquet | 51 |
| II.2 Diffusion par un atome à deux niveaux | 52 |
| II.2.1 Propriétés générales de la lumière diffusée | 52 |
| II.2.2 Réponse cohérente | 56 |
| II.2.3 Spectre de la lumière diffusée | 60 |
| II.3 Atomes multi-niveaux | 61 |
| II.3.1 Equations de Bloch optiques | 62 |
| II.3.2 Propriétés de la lumière émise | 68 |
| II.4 Conclusion | 72 |

Deuxième Partie : Vers un laser aléatoire à atomes froids 75

III Faisabilité d'un laser aléatoire à atomes froids : évaluation des mécanismes de gain 81

| | |
|--|-----|
| III.1 Dispositif expérimental | 81 |
| III.1.1 Vue d'ensemble de l'expérience | 82 |
| III.1.2 Dispositifs de caractérisation de l'échantillon | 88 |
| III.1.3 Vers les hautes épaisseurs optiques | 93 |
| III.2 Mécanismes de gain : tests expérimentaux | 94 |
| III.2.1 Gain Mollow | 95 |
| III.2.2 Mélange à 4 ondes | 97 |
| III.2.3 Gain Raman hyperfin | 101 |
| III.2.4 Gain Raman Zeeman | 104 |
| III.3 Conditions d'obtention du laser aléatoire | 105 |
| III.3.1 Seuil Letokhov d'un laser aléatoire cohérent à atomes froids | 106 |
| III.3.2 Application : Gain Mollow, Raman et Mélange à 4 ondes | 107 |
| III.3.3 Limites des modèles de seuil | 114 |
| III.3.4 Gain Raman Hyperfin : Laser aléatoire incohérent à 5 niveaux | 116 |
| III.4 Conclusion | 118 |

IV Piégeage radiatif dans un nuage actif d'atomes froids 121

| | |
|--|-----|
| IV.1 Comportements collectifs d'émission | 122 |
| IV.1.1 Mise en évidence expérimentale | 122 |
| IV.1.2 Impact du piégeage radiatif sur le rayonnement de fluorescence : modèle simple | 125 |
| IV.2 Modèle couplé du transport radiatif et de la réponse atomique | 125 |
| IV.2.1 Hypothèses d'un modèle de piégeage incohérent | 125 |
| IV.2.2 Ecriture des équations couplées | 126 |
| IV.2.3 Comparaison aux résultats expérimentaux | 131 |
| IV.3 Piégeage radiatif cohérent | 134 |
| IV.4 Conclusion | 138 |

Troisième Partie : Vols de Lévy de la lumière 141

V Caractérisation microscopique du transport anormal 151

| | |
|---|-----|
| V.1 L'Effet Doppler à l'origine de grands pas | 151 |
| V.2 Mesure de la distribution P de la taille des pas | 154 |
| V.2.1 Dispositif expérimental | 154 |
| V.2.2 Traitement des images | 159 |
| V.2.3 Taille P_1 du premier pas | 165 |
| V.3 Modèles de redistribution en fréquence et calcul de P_1 | 167 |
| V.4 Régime de diffusion multiple | 171 |

| | | |
|---|--|------------|
| V.4.1 | Thermalisation de la lumière | 172 |
| V.4.2 | Mesure de la distribution P | 174 |
| V.5 | Conclusion | 174 |
| Conclusion | | 179 |
| Annexes | | 184 |
| A Eléments de démonstration des équations de Bloch optiques - Théorème de régression quantique | | 185 |
| A.1 | Hamiltonien du système atome + champ | 185 |
| A.2 | Equations d'évolution des opérateurs atomiques | 187 |
| A.3 | Théorème de régression quantique | 192 |
| B Ecriture explicite des équations de Bloch optiques dans les configurations étudiées | | 195 |
| B.1 | Gain Mollow | 195 |
| B.2 | Mélange à quatre ondes | 197 |
| B.3 | Gain Raman Hyperfin : modèles 4 à 5 niveaux | 199 |
| C Publications | | 203 |
| Nomenclature | | 205 |
| Bibliographie | | 209 |

Introduction

Le désordre est omniprésent dans la nature. Rien d'étonnant, dès lors, à ce que les caractéristiques de la lumière qui nous parvient, et grâce à laquelle nous percevons notre environnement, soient façonnées par les propriétés de désordre des matériaux qui nous entourent. Si la prise en compte des détails de la configuration de ces milieux désordonnés n'est le plus souvent ni possible ni pertinente, un modèle statistique du désordre s'avère quant à lui indispensable pour expliquer leur aspect, remonter à des informations sur leur structure ou leur fonctionnement, voire agir sur eux par l'intermédiaire de la lumière.

Deux phénomènes essentiels doivent être distingués. Lorsque la lumière frappe la surface d'un matériau où une structuration à l'échelle sub-longueur d'onde interdit sa propagation, elle est absorbée ou réfléchi. Si la surface éclairée présente, à l'échelle mésoscopique, une rugosité importante, alors la réflexion a lieu dans toutes les directions de l'espace : ce phénomène de réflexion diffuse nous permet de voir la plupart des objets de notre quotidien. À l'inverse, si le matériau éclairé est essentiellement transparent mais possède une faible concentration d'éléments qui dévient la lumière - au sens où l'espacement moyen entre ces éléments n'est pas petit devant la longueur d'onde, on dit que celle-ci diffuse *dans* l'objet considéré (figure A). La peinture, les nuages, ou encore le brouillard constituent des exemples de milieux diffusants rencontrés couramment, mais l'intérêt de la communauté scientifique pour ces milieux a été principalement déclenché par deux autres systèmes : les gaz stellaires [Molisch 1998] et les tissus biologiques [Sebbah 2001]. Dans le premier cas, il s'agit de bien caractériser les sources d'où nous tirons l'essentiel de notre connaissance de l'univers lointain ; dans le second, l'enjeu est de pouvoir imager ou traiter des tissus malades en évitant une opération intrusive.

Des modèles basés sur l'optique géométrique permettent le plus souvent de rendre compte du transport de la lumière dans ces milieux désordonnés. On considère alors que les rayons lumineux se propagent en ligne droite entre les diffuseurs qui les dévient. Cette hypothèse permet d'écrire un bilan local du flux radiatif directionnel : l'équation de transfert radiatif [Chandrasekhar 1960]. Si le nombre de pas effectués par les rayons lumineux devient grand, la lumière réalise ce que l'on appelle une marche aléatoire, et le problème de transport peut être grandement simplifié. Les caractéristiques microscopiques du milieu n'interviennent plus que dans la détermination des paramètres du modèle : les distributions de probabilités régissant la durée et la

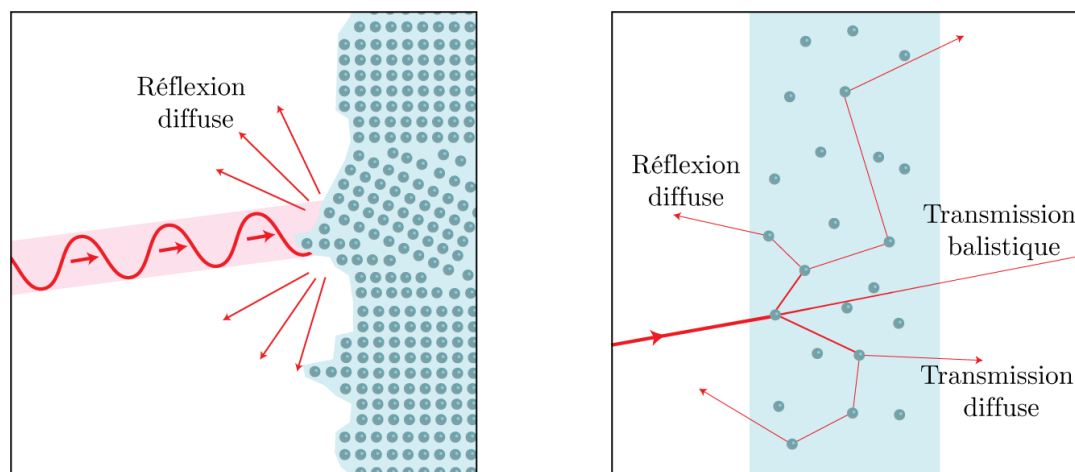


Figure A – Phénomènes de réflexion par une surface rugueuse (à gauche) et de diffusion multiple de la lumière (à droite).

taille des pas. Dans un milieu homogène, linéaire et non dispersif, cette dernière prend la forme d'une loi exponentielle : la loi de Beer-Lambert-Bouguer [Bouguer 1729]. Sa valeur moyenne, la distance caractéristique entre deux événements de diffusion, est le libre parcours moyen de diffusion l_{sc} .

Le modèle de la marche aléatoire possède une portée très générale et décrit de nombreux phénomènes de transport : mouvement brownien des particules en suspension dans l'air, diffusion d'un composé chimique dans un solvant, dissémination des virus, évolution des marchés financiers... Il fut initialement introduit par Pearson en mai 1905, qui, dans une lettre ouverte dans la revue Nature [Pearson 1905], pose la question suivante :

A man starts from the point O and walks l yards in a straight line ; he then turns through any angle whatever and walks another l yards in a second straight line. He repeats this process n times. Inquire the probability that after n stretches he is at a distance between r and $r + \delta r$ from his starting point O .

Lord Rayleigh lui répond quelques mois plus tard : en appliquant le théorème de la limite centrale, on obtient que, si le nombre de pas effectués n est suffisamment grand, la loi de probabilité recherchée est une gaussienne, dont l'écart type croît comme la racine du temps [Rayleigh 1905]. Indépendamment, toujours en mai 1905, Einstein étudie la marche aléatoire de particules en suspension dans un fluide, soumises aux collisions des molécules environnantes. Il montre que la propagation de ces particules obéit à une équation de diffusion, dont la solution de Green est exactement la loi gaussienne que trouvera Rayleigh. Cette conclusion reste valable pour tout système réalisant une marche aléatoire, tant que les hypothèses du théorème de la limite centrale sont vérifiées : les pas doivent être indépendants les uns des autres, la variance de la loi régissant leur taille finie, de même que leur durée moyenne.

Les équations de transfert radiatif et de diffusion permettent de calculer la moyenne statistique du champ d'intensité et son évolution temporelle dans les systèmes considérés, et plus généralement, d'effectuer des bilans d'énergie globaux sur des systèmes diffusants. Elles s'avèrent par exemple pertinentes pour décrire les transferts thermiques dans les processus industriels [Taine 2008], les atmosphères planétaires, et permettent une première description des équilibres stellaires [Chandrasekhar 1960].

Cependant, le caractère ondulatoire de la lumière ne peut toujours être négligé. L'exemple le plus frappant est obtenu lorsque le libre parcours moyen de diffusion devient de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde de la lumière. Les interférences multiples entre les ondes diffusées peuvent conduire à une suppression totale du transport : la localisation d'Anderson, prédite par Philip W. Anderson en 1958 pour des ondes de matières [Anderson 1958], puis étendue au cas des ondes classiques et notamment de la lumière par Sajeed John au début des années 80 [John 1984]. La localisation d'Anderson, pour la lumière, correspond à un régime extrême : la réalisation d'un milieu diffusant où le libre parcours moyen serait suffisamment court est restée, à ce jour, un challenge expérimental, d'autant que le milieu doit présenter une absorption négligeable pour que les signatures de la localisation puissent être mises en évidence.

De nombreuses observations réalisées dans des milieux plus dilués nécessitent également, pour être expliquées, la prise en compte du caractère ondulatoire et des propriétés de cohérence de la lumière. Les tavelures constituent l'exemple le plus évident : si l'on projette sur un écran la lumière provenant d'un milieu diffusant éclairé par une source cohérente, on observe une image à l'aspect granulaire, alternance de points sombres et brillants [Rigden 1962, Oliver 1963]. C'est simplement le résultat de l'interférence des ondes provenant des différents diffuseurs, qui possèdent des phases relatives aléatoires. En moyennant sur les réalisations possibles du désordre, on retrouve les prédictions du modèle diffusif. A une exception près : l'intensité rétrodiffusée vers la source présente un pic. En effet, chaque chemin ramenant la lumière jusqu'à la source forme une boucle, qui peut être parcourue dans les deux sens ; les ondes correspondantes parviennent exactement en phase à la source, et leurs amplitudes s'additionnent. C'est le phénomène de rétrodiffusion cohérente, encore appelé localisation faible, mis en évidence dans les années 80 [Wolf 1985]. Plus récemment, il a été montré qu'en ajustant le front d'onde incident sur un milieu diffusant, il est possible de modéliser les propriétés de transport de celui-ci, d'augmenter sa transmission diffuse totale, de focaliser à travers un échantillon désordonné [Vellekoop 2007, Popoff 2010a], voire même de transmettre une image [Popoff 2010b].

Dans les expériences décrites ci-dessus, le caractère cohérent de la source extérieure utilisée pour éclairer l'échantillon entraîne l'invalidité du modèle diffusif. Cependant, dans certains cas, il est possible que la lumière acquière un caractère monochromatique du fait des propriétés du milieu diffusant lui-même. Ainsi, si entre les diffuseurs, on place une matrice fournissant du gain, la lumière est à la fois piégée dans le système - via

la diffusion - et amplifiée. Les pertes sont proportionnelles à la surface du matériau, le gain à son volume. Il existe une taille critique du système au delà de laquelle l'intensité en son sein tend à augmenter jusqu'à saturation du gain. Ce processus d'emballlement, dont l'existence fut prédite en 1968 par Lethokhov [Letokhov 1968], est appelé bombe photonique, le régime associé atteint après saturation du gain, laser aléatoire. De fait, on peut se représenter ce processus comme un laser, dans lequel la rétroaction n'est plus assurée par une cavité mais par la diffusion. Outre un affinement global de leur spectre d'émission inhérent au processus de bombe photonique, les lasers aléatoires réalisés expérimentalement ont très tôt fait apparaître des pics spectraux multiples, étroits devant la largeur de la courbe de gain [Cao 1999] ou des statistiques de photons poissoniennes [Cao 2001]. Plus récemment, il a été mis en évidence que la taille critique d'emballlement de la bombe photonique, prédite via l'équation de la diffusion, est significativement modifiée si l'on prend en compte les effets d'interférences [Goetschy 2011]. Ces caractéristiques du laser aléatoire sont attribuées une sélection modale liée au processus de rétroaction, mais nombre d'entre elles restent incomprises à ce jour [Wiersma 2008].

La caractérisation des limites du modèle diffusif et de son applicabilité au cas de la propagation de la lumière constitue un enjeu majeur pour plusieurs raisons : elle ouvre la voie à la mise en place de modèles de transport plus généraux, nécessaires à la bonne compréhension, par exemple, des équilibres stellaires, mais applicables dans d'innombrables cas dans et hors du champ de la physique ; et elle constitue une étape nécessaire vers le contrôle de la diffusion des ondes en milieux désordonnés.

Les gaz monoatomiques ne constituent pas seulement un exemple parmi d'autres de milieu diffusant : leur étude, initiée par les astrophysiciens, a véritablement été motrice de la recherche sur la diffusion multiple de la lumière et est à l'origine des modèles de transport utilisés actuellement [Compton 1923, Chandrasekhar 1960]. La raison pour cela est probablement la simplicité et la qualité des modèles microscopiques disponibles pour ces systèmes : les atomes peuvent être représentés dans une excellente approximation par un système aux niveaux d'énergie discrets à l'origine d'un dipôle ponctuel. La possibilité de refroidir les atomes, supprimant ainsi la redistribution en fréquence lors de la diffusion par effet Doppler, simplifie encore ce modèle microscopique et devrait faire la part belle à la physique de la diffusion multiple.

Dans le présent mémoire, nous nous intéresserons à la diffusion de la lumière dans un gaz atomique éclairé à résonance. Nous considérerons deux situations dans lesquelles l'existence de mécanismes modifiant la fréquence de la lumière se propageant dans le milieu est susceptible d'entraîner l'invalidité des modèles de transport diffusifs standards. D'une part, nous montrerons qu'il est possible d'obtenir dans un gaz du gain par pompage optique, et de le combiner à la diffusion. Nous étudierons la possibilité d'obtenir un laser aléatoire dans un nuage d'atomes froids et décrirons les premières observations expérimentales effectuées dans un tel gaz, diffusant et actif. D'autre part, nous verrons que dans un gaz dilué à température ambiante, la propagation de la lumière

peut être modélisée en termes de marche aléatoire. Cependant, du fait de mécanismes de redistribution en fréquence, tel que l'effet Doppler, les hypothèses du théorème de la limite centrale sont brisées : les pas longs deviennent prépondérants au point que la variance de la loi régissant la taille des pas diverge [Holstein 1947]. L'équation de la diffusion est alors inapplicable. Nous montrerons que le transport relève dans ce cas d'un modèle plus général : celui des vols de Lévy [Lévy 1937, Pereira 2004].

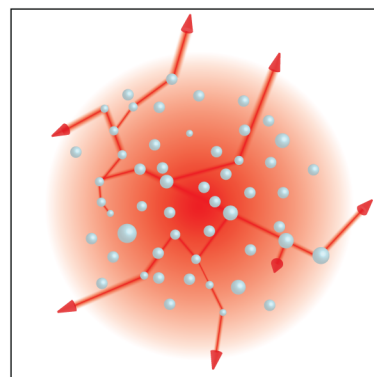
La première partie de ce manuscrit vise à introduire les éléments d'un modèle de transport de la lumière dans un gaz d'atomes éclairés à résonance, en mettant l'accent sur les gaz rendus actifs par un pompage optique.

Le Chapitre 1 propose une introduction générale aux modèles de transport en milieux diffusants. Nous commencerons par écrire un bilan phénoménologique local sur le flux radiatif, et montrerons que ce bilan conduit à l'Equation de Transfert Radiatif (ETR) lorsqu'est négligée la non-linéarité du milieu. Nous pourrions alors réinterpréter le transport en milieu optiquement épais en termes de marche aléatoire, et verrons dans quelles conditions cela conduit à un modèle de diffusion normale. En résolvant l'équation de la diffusion ainsi obtenue dans un milieu actif, nous mettrons enfin en évidence le phénomène de bombe photonique.

Dans le Chapitre 2, nous chercherons à décrire l'interaction résonante entre la lumière et un atome à deux, puis à plusieurs niveaux, soumis à un pompage optique. Les équations de Bloch-optiques constituent un outil de base permettant de déterminer le champ moyen de polarisation dans le gaz. Cependant, ce champ moyen ne peut seul rendre compte de l'émission de lumière par les atomes, et la prise en compte des fluctuations du dipôle quantique est nécessaire pour déterminer le spectre de la lumière rayonnée ou comprendre comment écrire le bilan d'énergie associé au processus de diffusion. Dans une certaine mesure, il reste possible de résumer la réponse atomique en termes de sections efficaces pouvant être introduites dans l'équation de la diffusion.

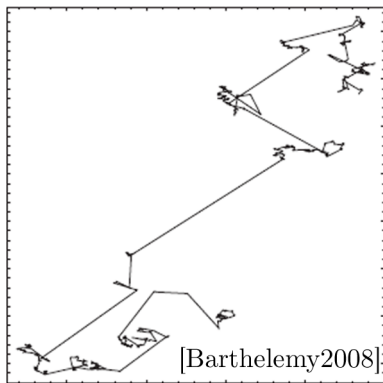
Dans une deuxième partie, nous étudierons la possibilité de réaliser un laser aléatoire dans un nuage d'atomes refroidis par lasers.

Ainsi, dans le Chapitre 3, nous décrirons le dispositif nous permettant de maintenir et de refroidir un gaz de Rubidium au sein d'un piège magnéto-optique et de caractériser l'échantillon obtenu ; nous montrerons qu'il est possible d'obtenir du gain dans un tel échantillon pompé à l'aide de lasers externes. Notamment, nous le mettrons en évidence par des expériences de spectroscopie pompe-sonde, comme cela a déjà été fait précédemment dans notre montage [Michaud 2008, Guerin 2008]. L'approche théorique présentée au Chapitre 2 sera déclinée dans les diffé-



rentes configurations de pompage considérées ici – gains Mollow, Raman, et Mélange à 4 ondes – ce qui permettra de valider les modèles correspondants. Nous les utiliserons ensuite, couplés aux résultats de l'équation de la diffusion, pour déterminer la taille critique de l'échantillon nécessaire à l'obtention d'un laser aléatoire et sélectionner finalement les conditions les plus favorables pour son observation.

Le Chapitre 4 décrira enfin les observations expérimentales réalisées dans ces conditions. Nous verrons que l'intensité et le spectre du rayonnement de fluorescence des atomes présentent une forte dépendance, non triviale, vis à vis de la densité du nuage. Nous montrerons que l'effet dominant observé peut être expliqué par des modèles de piégeage radiatif incohérents, sans invoquer aucun mécanisme de gain. Enfin, nous étudierons dans quelle mesure les autres signatures observées peuvent être considérées comme caractéristiques d'un laser aléatoire.



Finalement, nous nous intéresserons dans **une troisième partie** aux vols de Lévy de la lumière dans une vapeur atomique à température ambiante.

Dans le Chapitre 5, nous rappellerons pourquoi l'effet Doppler peut être à l'origine de pas de grande taille dans la marche aléatoire de la lumière, causant l'invalidité de l'équation de la diffusion. Nous présenterons ensuite un dispositif expérimental permettant de mesurer directement la distribution de la taille des pas, puis montrerons que, si cette distribution dépend à priori du pas considéré, elle

converge en régime de diffusion multiple vers une loi limite, à mesure que le spectre de la lumière se stabilise dans le milieu. Finalement, nous montrerons qu'il est possible de s'approcher d'une mesure de cette loi limite, et que le résultat obtenu permet de classer le régime de transport observé dans la catégorie des vols de Lévy.

Première Partie

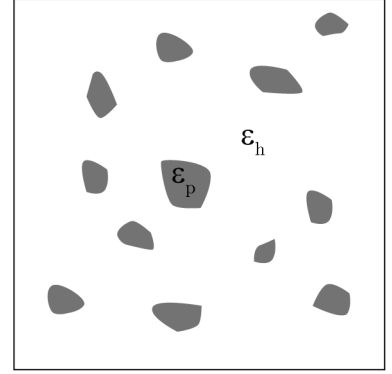
Ingrédients d'un modèle de transport

Introduction

Un milieu diffusant peut-être représenté comme une superposition d'un milieu transparent homogène et d'inclusions de permittivité diélectrique différente. Les équations de Maxwell conduisent directement à l'**équation de propagation de Helmholtz** du champ électrique en régime monochromatique :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) - \frac{\omega^2}{c_0^2} \epsilon(\mathbf{r}) \mu(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = i\omega \mu(\mathbf{r}) \mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega)$$

où $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ est le champ électrique à la position \mathbf{r} et à la pulsation ω , c_0 la célérité de la lumière dans le vide, $\epsilon(\mathbf{r})$ la permittivité relative du milieu, $\mu(\mathbf{r})$ sa perméabilité magnétique relative, et $\mathbf{j}(\mathbf{r}, \omega)$ la densité de courants extérieurs. Si sa résolution numérique dans un milieu de taille limitée est aujourd'hui possible par des méthodes de différences ou d'éléments finis [Kane 1966], cette équation n'en demeure pas moins **trop complexe pour être exploitable sur des systèmes désordonnés macroscopiques**, et fournit des résultats dont le détail a, pour beaucoup d'applications, peu d'importance. En revanche, elle constitue un point de départ pour démontrer l'équation de transfert radiatif [Barabanenkov 1968, Rytov 1989, Pierrat 2007]. Cette démonstration délicate ne sera pas développée ici ; notons simplement qu'elle nécessite de réaliser une moyenne sur les différentes configurations du désordre et de négliger les interférences entre les ondes provenant de deux diffuseurs distincts. La portée exacte de cette approximation reste une question ouverte à l'heure actuelle.



Historiquement, les modèles de transfert radiatif ont été établis de façon phénoménologique. Khvolson et Schuster en posent les premiers les bases en cherchant à écrire un bilan du flux radiatif local à partir des concepts de coefficient d'absorption et de diffusion [Khvolson 1890, Schuster 1905]. Plus tard, Compton fait le parallèle entre un processus de diffusion et la propagation de la lumière dans un gaz, en proposant une image de quanta - les photons - absorbés puis réémis par les atomes [Compton 1922, Compton 1923]. Il est ainsi le premier à utiliser l'équation de la diffusion pour décrire le transport de la lumière. Elle est ensuite corrigée pour prendre en compte le délai associé au processus de diffusion par un atome [Milne 1926], avant que ne soit dénoncée sa validité dans le cas spécifique de la diffusion résonante dans une vapeur atomique - à température élevée, à cause des effets de redistribution en fréquence [Kenty 1932, Holstein 1947]. Le travail de Compton introduit cependant le modèle diffusif de transport de la lumière, qui sera utilisé par la suite dans de nombreux autres systèmes. Enfin, reprenant les bilans de flux radiatif réalisés par Khvolson et Schuster, Chandrasekhar établit l'équation de transfert radiatif sous sa forme actuelle, valable pour décrire la propagation de la lumière dans un milieu diffusant comme dans l'espace libre, mais aussi sa réflexion ou son absorption par des surfaces lisses ou rugueuses [Chandrasekhar 1960].

Il montre que, dans un milieu désordonné où le libre parcours moyen est petit devant la taille du milieu, elle conduit à l'équation de la diffusion.

L'application de ces modèles de transport à un gaz, et en particulier à un nuage d'atomes froids, illuminé par un ou plusieurs faisceaux cohérents n'est pas immédiate. En effet, **pour déterminer les paramètres intervenant dans l'équation de transfert radiatif ou l'équation de la diffusion, il est nécessaire de décrire l'interaction entre la lumière et un élément de volume du gaz**, ou plus simplement un atome. Cela implique de comprendre l'évolution du système atomique en présence d'un champ incident d'une part, les caractéristiques essentielles de la lumière qu'il réémet d'autre part.

De nombreux modèles sont à notre disposition pour ce faire, depuis les équations d'Einstein, qui décrivent les transitions entre niveaux atomiques sous une excitation incohérente large bande, jusqu'aux modèles "tout quantiques" issus de la seconde quantification [Cohen-Tannoudji 2001]. Si l'on souhaite pouvoir décrire le couplage d'un atome à un champ extérieur cohérent et résonant avec une transition atomique – ce qui sera nécessaire pour décrire le phénomène de laser aléatoire – les équations d'Einstein ne sont pas pertinentes. D'autre part, s'il était possible de ne tenir compte que du couplage de l'atome au champ incident, alors il nous suffirait de résoudre l'équation de Schrödinger décrivant l'évolution de la fonction d'onde atomique sous l'effet d'une perturbation sinusoïdale. Cependant, les phénomènes de relaxation liés au couplage de l'atome aux modes du vide sont tout aussi nécessaires pour décrire le régime stationnaire.

Les équations de Bloch-optiques permettent précisément de décrire l'évolution de la matrice densité atomique sous l'effet conjugué d'ondes incidentes cohérentes et du couplage aux modes du vide, sans avoir la complexité d'une approche basée sur la quantification du champ. Une fois connue la matrice densité, on peut obtenir l'évolution de la polarisation d'un atome, et en déduire les sections efficaces qui décrivent son interaction avec la lumière [Mollow 1972], ou les coefficients de réponse non linéaire du gaz [Boyd 1981]. L'utilisation du théorème de régression quantique [Lax 1968] permet également d'obtenir le spectre du rayonnement de fluorescence de l'atome à partir d'équations très similaires aux équations de Bloch-optiques.

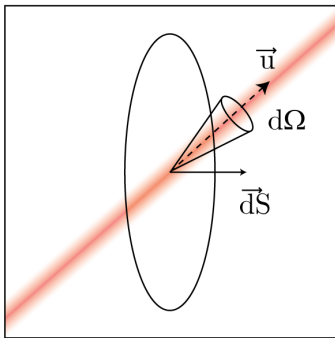
Le premier chapitre de cette partie vise à décrire les modèles de transport de la lumière en milieux diffusants, en cernant leur domaine de validité. Dans un deuxième temps, nous établirons les équations de Bloch optiques, modèle de l'interaction lumière matière, puis verrons comment extraire de la matrice densité obtenue les paramètres nécessaires aux modèles de transport.

Modèles de transport en milieux diffusants

Ce premier chapitre présente les propriétés optiques des milieux diffusants, et les modèles de transport de l'intensité lumineuse qui s'y appliquent. La première partie, très introductive, décrit les processus élémentaires d'interaction rayonnement matière dans un milieu diffusant et établit les bilans d'énergie associés pour aboutir à une équation de transport : l'équation de transfert radiatif. Cette présentation est notamment inspirée des cours dispensés par J. Taine et R. Carminati à l'Ecole Centrale Paris en 2008. Dans un deuxième temps, nous simplifierons ce modèle pour aboutir à l'équation de la diffusion, plus exploitable. On cherchera à se familiariser avec celle-ci en étudiant sa solution dans une sphère de diffuseurs en présence de sources internes et de gain. Cela nous conduira à mettre en évidence le phénomène de bombe photonique, dont la prédiction est à l'origine de l'étude du laser aléatoire présentée par la suite.

I.1 Equation de Transfert Radiatif (ETR)

I.1.1 Définition de la luminance



L'équation de transfert radiatif décrit l'évolution de la grandeur appelée luminance $L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)$. Elle peut être introduite de la façon suivante. Soit un élément de surface $d\mathbf{S} = dS \mathbf{n}$ dans le milieu. Alors la puissance radiative monochromatique à la pulsation ω traversant à l'instant t cet élément de surface dans un angle solide $d\Omega$ autour de la direction définie par le vecteur unitaire \mathbf{u} s'écrit :

$$d^5 P_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) = L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) d\mathbf{S} \cdot \mathbf{u} d\Omega d\omega \quad (\text{I.1})$$

La luminance s'exprime donc en $W.m^{-2}.Hz^{-1}.sr^{-1}$. On peut se la représenter plus intuitivement comme un flux radiatif directionnel associé à un rayon lumineux à une

fréquence donnée. Plus grossièrement encore, c'est un moyen de compter le nombre de photons de pulsation ω se propageant selon la direction \mathbf{u} traversant un élément de surface dans un intervalle de temps donné. Notons que, pour définir une luminance à une pulsation ω dépendante du temps, il est nécessaire de faire une approximation d'enveloppe lentement variable et de séparer ainsi les échelles de temps. De même, parler d'une luminance locale se propageant dans une direction donnée implique une séparation des échelles d'espace.

La connaissance de la luminance en tout point d'un milieu donne directement accès au vecteur flux radiatif $\mathbf{q}(\mathbf{r}, t)$ – identique au vecteur de Poynting défini dans le cas de champs monochromatiques [Ishimaru 1999] :

$$\mathbf{q}(\mathbf{r}, t) = \int_{4\pi} L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) \mathbf{u} d\Omega \quad (\text{I.2})$$

De même, la densité spectrale d'énergie u_ω s'écrit :

$$u_\omega(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{v_E} \int_{4\pi} L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) d\Omega \quad (\text{I.3})$$

Cette densité d'énergie peut également être calculée à partir des champs électrique E et magnétique B , et de propriétés du milieu telles que sa polarisabilité ϵ et sa perméabilité magnétique μ [Jackson 1999, sections 4.7 et 6.2]. Dans un milieu linéaire et non absorbant, elle est donnée par :

$$u_\omega(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \left(\epsilon E(\omega)^2 + \frac{B(\omega)^2}{\mu} \right) \quad (\text{I.4})$$

En négligeant la contribution du champ magnétique, on peut donc lier directement la densité spectrale d'énergie au champ électrique dans le milieu. Notons par ailleurs que l'équation I.3 définit la vitesse de propagation de l'énergie dans le milieu v_E . Nous reviendrons sur cette notion par la suite (voir I.2.4). Notons pour l'instant que, dans un milieu dispersif conservatif (sans pertes, diffusion ou gain), elle est égale à la vitesse de groupe [Biot 1957].

I.1.2 Propriétés locales d'un milieu diffusant

Afin de pouvoir réaliser ce bilan de luminance (ou de flux radiatif), il est nécessaire dans un premier temps de décrire les processus élémentaires via lesquels le milieu interagit avec la lumière : l'absorption, l'émission, la diffusion. Si les fondements de l'équation de transfert radiatif sont toujours les mêmes, la façon de décrire ces phénomènes varie d'un système à l'autre. En transferts thermiques, ou dans un grand nombre de systèmes astrophysiques, on considère souvent des milieux denses dans lesquels le rayonnement

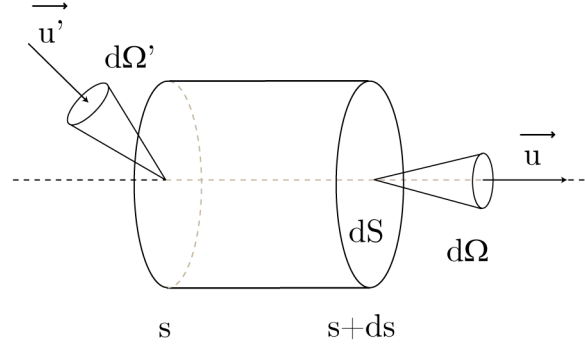


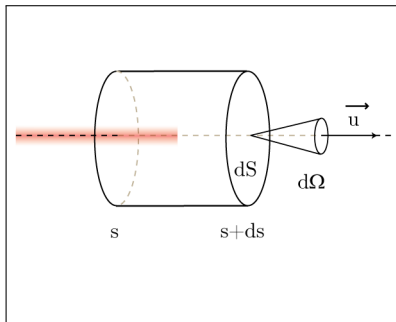
Figure I.1 – Élément de volume considéré pour établir le bilan de luminance.

est couplé à un continuum d'états de la matière. A l'équilibre thermodynamique local, l'émission et l'absorption du milieu sont liées et déterminées par la température [Taine 2008].

Dans la suite, nous nous intéressons à des gaz dilués, dans lesquels les atomes possèdent des niveaux d'énergie discrets. A température ambiante – ou a fortiori dans un nuage refroidi par lasers – et à l'équilibre thermodynamique, la population des états excités est négligeable devant la population totale; l'émission thermique est donc inexistante [Cannon 1985]. Le caractère fortement hors équilibre des systèmes que nous étudierons est seul responsable de l'importance du phénomène d'émission dans les processus que nous allons considérer.

On considère à présent la trajectoire d'un rayon lumineux monochromatique, de pulsation ω , dans un gaz de densité n_0 , et l'on effectue un bilan d'énergie sur un cylindre de base dS compris entre les abscisses curvilignes s et $s + ds$. On note \mathbf{u} la direction de propagation du faisceau.

Absorption et gain



Le processus le plus simple d'interaction lumière matière est sans doute le processus d'absorption : un photon disparaît, et son énergie est transférée au milieu, puis évacuée par une voie non radiative. La puissance cédée par la lumière à l'élément de volume dV considéré vaut alors :

$$\begin{aligned} d^6 P_{\omega, \text{abs}}(s, \mathbf{u}, t) &= -\kappa_{\text{abs}, \omega}(s) d^5 P_{\omega}(s, \mathbf{u}, t) ds \\ &= -\kappa_{\text{abs}, \omega}(s) L_{\omega}(s, \mathbf{u}, t) dS d\Omega d\omega ds \end{aligned} \quad (\text{I.5})$$

Le coefficient d'absorption $\kappa_{\text{abs},\omega}(s)$ peut dépendre d'un grand nombre de paramètres, tels que :

- Les caractéristiques locales du milieu (densité, composition,...)
- Le champ de luminance à une pulsation quelconque au point \mathbf{r} considéré (cas d'un milieu non linéaire)
- Le champ électrique extérieur (cas des afficheurs à cristaux liquides)
- etc.

Dans un système soumis à un pompage externe, ce coefficient d'absorption peut être négatif : le milieu cède alors de la puissance à la lumière, on parle de gain.

Si l'on suppose le milieu linéaire - au sens où sa réponse ne dépend pas de l'intensité lumineuse incidente - homogène et purement absorbant, le coefficient d'absorption devient indépendant de la position considérée, et l'on peut exprimer la luminance en fonction de l'abscisse curviligne s . En régime permanent, on obtient à partir de I.1 et I.5 :

$$\begin{aligned} L_{\omega}(s, \mathbf{u}) &= L_{\omega}(0, \mathbf{u}) \exp[-\kappa_{\text{abs},\omega}s] \\ &= L_{\omega}(0, \mathbf{u}) \exp\left[-\frac{s}{l_{\text{abs},\omega}}\right] \end{aligned} \quad (\text{I.6})$$

On retrouve ainsi la loi de Beer-Lambert-Bouguer, où apparaît la longueur d'absorption $l_{\text{abs},\omega} = \frac{1}{\kappa_{\text{abs},\omega}}$. Dans un gaz, seuls les atomes ou molécules constituant le gaz sont susceptibles de prélever de l'énergie sur le faisceau. On peut alors réécrire le coefficient d'absorption sous la forme :

$$\kappa_{\text{abs},\omega}(s) = n_0(s)\sigma_{\text{abs},\omega}(s) \quad (\text{I.7})$$

où n_0 est la densité du gaz et $\sigma_{\text{abs},\omega}$ une section efficace d'absorption. L'équation I.5 nous montre que cette section efficace d'absorption est simplement le rapport de la puissance totale $W_{\omega,\text{abs}}$ absorbée par un atome à la pulsation ω et de l'intensité diffuse à cette pulsation incidente selon toutes les directions $I_{\omega} = \int_{4\pi} L_{\omega} d\Omega$.

$$\sigma_{\text{abs},\omega}(s) = \frac{W_{\omega,\text{abs}}(s)}{I_{\omega}(s)} \quad (\text{I.8})$$

Dans un gaz dilué, il n'existe pas de processus de désexcitation non radiative des atomes, et donc à proprement parler pas d'absorption. Nous verrons cependant que la diffusion inélastique fait apparaître un terme en tous points similaire à un terme d'absorption dans l'équation de transfert radiatif.

Emission

Le processus d'émission est le complémentaire du processus d'absorption : un photon apparaît, et le milieu cède de l'énergie au champ. Le flux est donc augmenté :

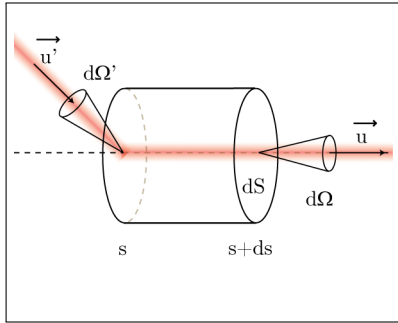
$$d^6 P_{\omega,\text{em}}(s, \mathbf{u}) = \eta_{\omega}(s) dS d\Omega d\omega ds \quad (\text{I.9})$$

Le coefficient d'émission η_ω s'exprime en fonction de la puissance $W_{\omega,em}$ rayonnée par l'atome à la pulsation considérée :

$$\eta_\omega = \frac{W_{\omega,em}}{4\pi} \quad (I.10)$$

Notons que ce coefficient d'émission peut à priori dépendre des conditions d'éclairement du milieu. Ainsi, il est tout à fait possible que le milieu amplifie l'intensité qu'il reçoit, mais en ré-émettant la lumière dans toutes les directions de l'espace : on parlera alors de gain diffus. Dans un tel milieu non linéaire, le sens de la distinction entre absorption, gain et émission est limité ; les trois phénomènes peuvent être décrits dans un même terme du bilan d'énergie, fonction des luminances incidentes.

Diffusion élastique



La lumière est diffusée lorsque sa direction de propagation est modifiée par interaction avec la matière. Lors d'une diffusion élastique, la fréquence du rayonnement est inchangée : il s'agit d'un processus cohérent. La diffusion élastique fait apparaître deux termes dans notre bilan de flux : l'un décrit une perte par diffusion, liée à la déviation d'une partie du rayonnement d'intérêt vers d'autres directions de propagation ; l'autre décrit un gain par diffusion, du fait de la réorientation de photons diffus dans la direction d'intérêt. D'où la variation de puissance élémentaire :

$$\begin{aligned} d^6 P_{\omega,sc}(s, \mathbf{u}, t) = & -\kappa_{sc,\omega}(s) d^5 P_\omega(s, \mathbf{u}, t) ds \\ & + ds \frac{\kappa_{sc,\omega}(s)}{4\pi} \int_{4\pi} d^5 P_\omega(s, \mathbf{u}', t) p_\omega(\mathbf{u}, \mathbf{u}') d\Omega' \end{aligned} \quad (I.11)$$

$\kappa_{sc,\omega}(s)$ est le coefficient de diffusion de la luminance. Il est similaire en tous points au coefficient d'absorption défini précédemment. Notamment, pour les systèmes gazeux qui nous intéressent, ce coefficient peut être réécrit comme le produit de la densité d'atomes et de la section efficace de diffusion σ_{sc} :

$$\kappa_{sc,\omega}(s) = n(s) \sigma_{sc,\omega}(s) \quad (I.12)$$

Quant à $p_\omega(\mathbf{u}, \mathbf{u}')$, c'est la fonction de phase des diffuseurs : elle décrit la probabilité qu'un photon se propageant dans la direction \mathbf{u}' , s'il est diffusé, soit dévié dans la direction \mathbf{u} .

Extinction et Epaisseur optique

A l'instar de ce que nous avons fait pour un milieu absorbant, nous pouvons introduire la longueur caractéristique de l'atténuation du faisceau balistique du fait des pertes par diffusion dans un milieu homogène :

$$l_{\text{sc},\omega} = \frac{1}{\kappa_{\text{sc},\omega}} \quad (\text{I.13})$$

l_{sc} est le libre parcours moyen, distance moyenne entre deux événements de diffusion.

Dans un milieu homogène absorbant et diffusant, la luminance incidente - balistique - subit une atténuation exponentielle dont le paramètre $\kappa_{\text{ext},\omega} = \kappa_{\text{abs},\omega} + \kappa_{\text{sc},\omega}$ est le coefficient d'extinction :

$$L_{\omega}(s, \mathbf{u}) = L_{\omega}(0, \mathbf{u}) \exp[-\kappa_{\text{ext},\omega} s] \quad (\text{I.14})$$

Son inverse $l_{\text{ext},\omega} = 1/\kappa_{\text{ext},\omega}$ est la longueur d'extinction ; elle permet de définir l'épaisseur optique, rapport de la taille du milieu D (dans une direction particulière) et de cette longueur d'extinction :

$$b(\omega) = \frac{D}{l_{\text{ext},\omega}} \quad (\text{I.15})$$

Ainsi, la transmission balistique à travers le milieu est donnée par :

$$T(\omega) = \exp[-b(\omega)] \quad (\text{I.16})$$

Nous verrons par la suite que l'épaisseur optique à résonance b_0 est un paramètre clé pour décrire les propriétés de diffusion d'un gaz.

Diffusion inélastique

Lors d'un événement de diffusion par un atome, l'énergie d'un photon peut être modifiée (figure I.2) :

- soit par échange avec l'atome. L'état interne ou le mouvement de celui-ci sont alors affectés. Notons cependant que l'impulsion doit être conservée, de sorte que, pour un atome diffusant un photon unique sans changement d'état interne, la diffusion n'est inélastique que si l'atome possède initialement une vitesse non nulle dans le référentiel de l'observateur¹.
- soit par échange avec un autre photon. Ce processus ne peut être significatif que si l'atome est exposé à un flux suffisamment important.

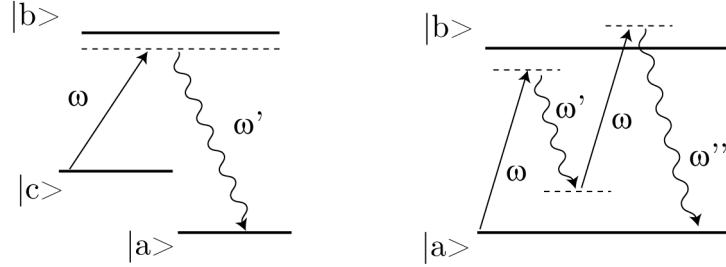


Figure I.2 – **Processus de diffusion inélastique. A gauche** : par changement d'état interne de l'atome. **A droite** : par transfert d'énergie entre deux photons diffusés (processus d'ordre 2 en champ incident).

Ce mécanisme de diffusion inélastique couple les luminances aux différentes fréquences. On peut modifier le bilan de puissance I.11 pour le prendre en compte :

$$d^6 P_{\omega, \text{insc}}(s, \mathbf{u}, t) = -\kappa_{\text{insc}, \omega}(s, t) d^5 P_{\omega}(s, \mathbf{u}, t) ds + ds \frac{\kappa_{\text{insc}, \omega}(s, t)}{4\pi} \int_{\omega'} \int_{4\pi} d^5 P_{\omega'}(s, \mathbf{u}', t) p(\omega, \omega', \mathbf{u}, \mathbf{u}', s, t) d\Omega' \quad (\text{I.17})$$

La fonction de phase $p(\omega, \omega', \mathbf{u}, \mathbf{u}', s, t)$ décrit cette fois la probabilité que la pulsation et la direction de propagation d'un photon soient respectivement changées de ω' à ω et de \mathbf{u}' à \mathbf{u} . Cette fonction, comme le montre la figure I.2, dépend de l'état interne des diffuseurs, lui même influencé par le champ de luminance. Finalement, la complexité de cette description la rend peu pertinente.

Lorsque la diffusion est isotrope, on peut plus simplement décrire l'effet de la diffusion inélastique par des termes d'émission et d'absorption dans le bilan de puissance :

$$d^6 P_{\omega, \text{insc}}(s, \mathbf{u}, t) = -\kappa_{\text{insc}, \omega}(s, t) d^5 P_{\omega}(s, \mathbf{u}, t) ds + \eta_{\text{insc}, \omega}(s, t) \quad (\text{I.18})$$

Bien sûr, toute la difficulté repose alors dans la détermination des coefficients correspondants.

I.1.3 L'ETR : un bilan local d'énergie

En prenant en compte tous les phénomènes décrits précédemment, nous pouvons finalement réaliser un bilan d'énergie de l'interaction lumière matière . Les équations I.5, I.9,

1. Ce n'est pas tout à fait vrai, du fait du recul subi par l'atome lors de la diffusion. Si l'on prend en compte ce recul, seule la diffusion vers l'avant peut être parfaitement élastique. Dans nos vapeurs de rubidium, le décalage en fréquence d'un photon du fait du recul atomique reste cependant négligeable devant les largeurs spectrales des transitions atomiques ou des lasers utilisés.

I.11 et I.18 conduisent à :

$$\begin{aligned}
& [L_\omega(s + v_E dt, \mathbf{u}, t + dt) - L_\omega(s, \mathbf{u}, t)] dS d\Omega d\omega = \\
& - [\kappa_{\text{abs},\omega}(s, t) + \kappa_{\text{sc},\omega}(s, t)] L_\omega(s, \mathbf{u}, t) v_E dt dS d\Omega d\omega \\
& + v_E dt dS d\Omega d\omega \frac{\kappa_{\text{sc},\omega}(s, t)}{4\pi} \int_{4\pi} L_\omega(s, \mathbf{u}', t) p_\omega(\mathbf{u}, \mathbf{u}') d\Omega' \\
& + v_E dt \eta_\omega(s, t) dS d\Omega d\omega
\end{aligned} \tag{I.19}$$

où la contribution de la diffusion inélastique a été directement incluse dans les coefficients de diffusion et d'émission. On reconnaît dans le premier membre la dérivée totale de la luminance par rapport au temps. En utilisant :

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + v_E \mathbf{u} \cdot \nabla \tag{I.20}$$

on obtient l' **équation de transfert radiatif** :

$$\boxed{
\begin{aligned}
\left[\frac{1}{v_E} \frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \right] L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) = & - \kappa_{\text{ext},\omega}(\mathbf{r}, t) L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) \\
& + \frac{\kappa_{\text{sc},\omega}(\mathbf{r}, t)}{4\pi} \int_{4\pi} L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}', t) p_\omega(\mathbf{u}, \mathbf{u}') d\Omega' \\
& + \eta_\omega(\mathbf{r}, t)
\end{aligned}
} \tag{I.21}$$

L'ETR est une équation intégral-différentielle qui régit le transport de la luminance. Elle n'admet le plus souvent pas de solution analytique. Cependant, elle se prête bien à des simulations de Monte-Carlo ou, dans certains cas, à une analyse modale. Son intérêt réside pour nous dans son large domaine de validité, qui couvre aussi bien le domaine balistique que les régimes fortement diffusants – dans la limite de densités suffisamment faibles pour que l'impact des phénomènes d'interférences reste négligeable.

I.2 Le modèle diffusif

Dans la description précédente, nous nous sommes représentés la propagation de la lumière comme une suite de déflexions des rayons lumineux par les diffuseurs. Dès lors, il semble approprié de décrire la propagation de la lumière dans un milieu diffusant par un modèle de marche aléatoire. Dans ce paragraphe, nous allons introduire les caractéristiques générales d'un tel modèle et voir sous quelles hypothèses il conduit à une équation de la diffusion. Nous tâcherons ensuite de retrouver ce modèle diffusif à partir de l'ETR.

I.2.1 Marches aléatoires et équation de la diffusion

On considère des particules réalisant des pas successifs dans un milieu diffusant, tels que :

- La direction de chaque pas est tirée aléatoirement ; toutes les directions sont équiprobables.
- La longueur Δr et la durée $\Delta\tau$ des pas sont régies par une distribution $P_s(\Delta r, \Delta\tau)$.
- Les pas sont statistiquement indépendants (processus Markovien).

C'est le modèle de la marche aléatoire en temps continu sous sa forme la plus générale (voir [Klafter 1980, Metzler 2000b], et figure I.3). Notons que l'on peut déduire de P_s la distribution P de la taille des pas :

$$P(\Delta r) = \int_{-\infty}^{+\infty} P_s(\Delta r, \Delta\tau) d\Delta\tau \quad (\text{I.22})$$

tout comme la distribution Q régissant leur durée :

$$Q(\Delta\tau) = \int_0^{+\infty} P_s(\Delta r, \Delta\tau) d\Delta r \quad (\text{I.23})$$

D'une manière générale, les variables aléatoires Δr et $\Delta\tau$ peuvent être corrélées : si par exemple les particules se propagent à une vitesse fixée, alors les pas de grande taille sont aussi ceux nécessitant le plus de temps. Ici, cependant, on fera l'hypothèse que ces deux variables sont indépendantes, de sorte que $P_s(\Delta r, \Delta\tau) = P(\Delta r)Q(\Delta\tau)$. C'est par exemple le cas si les temps de propagation sont courts devant le temps passé par les particules au niveau des diffuseurs.

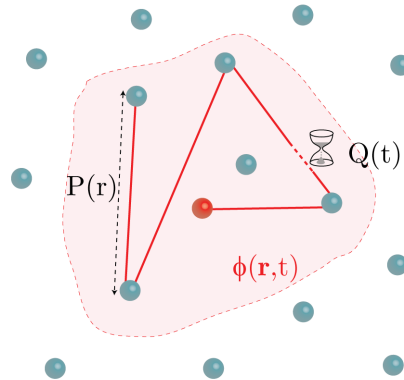


Figure I.3 – Schéma de principe d'une marche aléatoire.

A l'instar de Pearson [Pearson 1905], on peut rechercher la densité de probabilité de présence² $\Phi(\mathbf{r}, t)$ d'une particule à une distance r de son point de départ après un temps t , c'est à dire rechercher la solution de Green du problème. Dans le cas général, c'est une question délicate – nous y reviendrons au chapitre V. En revanche, si l'on suppose finie la variance $\langle \Delta r^2 \rangle$ de la distribution qui régit la taille des pas – et à fortiori sa valeur moyenne l_{sc} – de même que leur durée moyenne $\langle \Delta \tau \rangle$, alors le problème se simplifie considérablement.

Soit \mathbf{r}_N la position de notre particule après N pas ; c'est un vecteur à d composantes, où d est la dimension de l'espace considéré. D'après le théorème de la limite centrale, la distribution qui régit \mathbf{r}_N converge en loi vers une loi normale d'écart type $(2N \langle \Delta r^2 \rangle)/d$:

$$\Phi(\mathbf{r}, N) = \left(\frac{4\pi N \langle \Delta r^2 \rangle}{d} \right)^{-\frac{d}{2}} \exp \left[-\frac{d r^2}{4N \langle \Delta r^2 \rangle} \right] \quad (\text{I.24})$$

Le nombre moyen de pas effectués après un temps t s'écrit simplement comme le quotient de ce temps et de la durée moyenne d'un pas : $N = t / \langle \Delta \tau \rangle$. On obtient finalement :

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = (4\pi \mathcal{D} t)^{-\frac{d}{2}} \exp \left[-\frac{r^2}{4\mathcal{D} t} \right] \quad (\text{I.25})$$

où :

$$\boxed{\mathcal{D} = \frac{\langle \Delta r^2 \rangle}{d \langle \Delta \tau \rangle}} \quad (\text{I.26})$$

\mathcal{D} est le **coefficient de diffusion**. Notons qu'il s'exprime en fonction des moments des lois qui régissent la marche aléatoire. Si la distribution de la taille des pas est une loi exponentielle, alors sa variance $\langle \Delta r^2 \rangle$ est le carré du libre parcours moyen l_{sc} , encore égal à la longueur de transport . On retrouve alors la forme la plus habituelle du coefficient de diffusion pour un système de diffuseurs isotropes :

$$\mathcal{D} = \frac{v l_{sc}}{d} \quad (\text{I.27})$$

où $v = l_{sc} / \langle \tau \rangle$ est la vitesse moyenne de propagation des particules.

L'équation I.25 donne une solution de Green de notre problème . L'opérateur $\partial/\partial t - \mathcal{D}\Delta$ admet une solution de Green identique. Par conséquent, le problème de propagation peut être décrit par une **équation de la diffusion** :

$$\boxed{\left[\frac{\partial}{\partial t} - \mathcal{D}\Delta \right] \Phi(\mathbf{r}, t) = S(\mathbf{r}, t)} \quad (\text{I.28})$$

2. Pour nous, il s'agit de la densité de probabilité de présence des photons à une fréquence ω donnée, $\Phi = u(\omega)/(\hbar\omega)$

où $S(\mathbf{r}, t)$ est une fonction source. L'équation de la diffusion permet de décrire le transport de particules soumises à une marche aléatoire markovienne, dans un milieu de grande taille devant le libre parcours moyen – de sorte que les particules effectuent un nombre élevé de pas avant de quitter le milieu – et lorsque la moyenne et la variance des lois qui régissent respectivement la taille et la durée des pas sont finies.

I.2.2 Libre parcours moyen de diffusion et longueur de transport

Pour une fonction de phase arbitraire, la direction de propagation de la lumière après une diffusion n'est pas totalement décorrélée de la direction de propagation initiale. Le facteur d'anisotropie g permet de quantifier l'importance de cette corrélation résiduelle :

$$g = \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} p_{\omega}(\mathbf{u}, \mathbf{u}') \mathbf{u} \cdot \mathbf{u}' d\Omega' = \langle \cos(\mathbf{u}, \mathbf{u}') \rangle \quad (\text{I.29})$$

Ainsi, g vaut 0 si la diffusion est totalement isotrope, 1 si elle est totalement concentrée vers l'avant.

Du fait de cette corrélation résiduelle, nous ne pouvons considérer que la lumière réalise une marche aléatoire Markovienne - sans mémoire entre les pas - dont la taille moyenne de pas serait donnée par le libre parcours moyen l_{sc} . Nous pouvons cependant nous demander quelle distance doit parcourir la lumière pour perdre la mémoire de sa direction de propagation initiale \mathbf{e}_x .

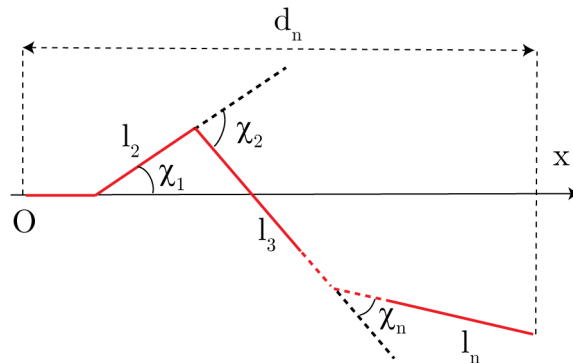


Figure I.4 – Configuration utilisée pour le calcul de la longueur de transport.

On considère la situation simplifiée d'une marche aléatoire à deux dimensions. Soit d_i la distance parcourue selon l'axe Ox après i pas, l_i la longueur du pas i , et χ_i l'angle entre

les directions des pas i et $(i - 1)$ (voir figure I.4). Alors l'angle Θ_N entre la direction associée au pas N et l'axe Ox est donné par :

$$\Theta_N = \sum_{i=1}^N \chi_i \quad (\text{I.30})$$

La direction de propagation de la lumière après N pas est totalement décorrélée de sa direction de propagation initiale si et seulement si :

$$\langle \cos(\Theta_N) \rangle = 0 \quad (\text{I.31})$$

où $\langle \rangle$ dénote une valeur moyenne sur les réalisations. On a :

$$\begin{aligned} \langle \cos(\Theta_2) \rangle &= \langle \cos(\chi_1 + \chi_2) \rangle \\ &= \langle \cos(\chi_1) \cos(\chi_2) \rangle - \langle \sin(\chi_1) \sin(\chi_2) \rangle \\ &= g^2 \end{aligned} \quad (\text{I.32})$$

La moyenne du sinus s'annule, le système composé d'un diffuseur et d'un rayon incident étant invariant par rotation selon l'axe de ce dernier. On obtient par récurrence :

$$\langle \cos(\Theta_N) \rangle = g^N \quad (\text{I.33})$$

de sorte que la direction de propagation de la lumière n'est totalement décorrélée de sa direction initiale qu'après un nombre infini de pas (sauf dans le cas $g = 0$). Lorsque la condition de décorrélation totale est atteinte, la lumière a en moyenne parcouru selon Ox une distance :

$$\lim_{N \rightarrow \infty} l_{sc} \sum_{i=1}^N g^i = \frac{l_{sc}}{1 - g} = l_{tr} \quad (\text{I.34})$$

La diffusion de la lumière dans le milieu peut être modélisé par une marche aléatoire **markovienne** dont la taille typique des pas est la longueur de transport $l_t r$. Nous verrons au paragraphe suivant qu'elle est par conséquent la bonne longueur à utiliser pour calculer le coefficient de diffusion.

Cependant, les atomes qui composent les gaz qui nous intéressent peuvent être très bien modélisés par des dipôles ponctuels. Le diagramme d'émission des dipôles étant centrosymétrique, le facteur d'anisotropie g s'annule alors. Qui plus est, dans le cas de la diffusion par des atomes multi-niveaux, on peut considérer en très bonne approximation que la diffusion est isotrope, de sorte que la fonction de phase qui intervient dans l'équation de transfert radiatif est simplement constante [Budker 2004, p. 152].

I.2.3 Equation de la diffusion : démonstration à partir de l'ETR

Nous avons établi que la propagation de particules soumises à une marche aléatoire peut être décrite par une équation de la diffusion. Cependant, on peut raisonnablement se demander si l'approche particulaire utilisée est nécessaire ou pertinente dans le cas de la lumière. Nous allons voir ici que l'équation de la diffusion peut être établie directement à partir de l'ETR, moyennant certaines hypothèses.

La démarche proposée ici (tirée de [Ishimaru 1999]) est tout à fait analogue à celle utilisée pour obtenir une équation de transport dans les gaz ou les plasmas à partir de l'équation de Boltzmann [Bittencourt 2004]. En calculant les N premiers moments de l'ETR, on obtient N équations liant les $N + 1$ premiers moments de la luminance. Il est alors nécessaire d'introduire une relation de fermeture, relation introduite sur une base arbitraire ou phénoménologique, et liant le moment d'ordre $N + 1$ de la luminance aux moments d'ordre inférieur.

Moment d'ordre 0 de l'ETR

On cherche à établir une équation d'évolution de la densité d'énergie électromagnétique $u_\omega(\mathbf{r}, t)$, qui n'est autre que l'intégrale de la luminance sur les directions de l'espace. En réalisant cette intégration dans les différents membres de l'ETR, on obtient son moment d'ordre 0 :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} u_\omega(\mathbf{r}, t) + \int_{4\pi} \mathbf{u} \cdot \nabla L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) d\Omega = & - [\kappa_{\text{abs},\omega} + \kappa_{\text{sc},\omega}] u_\omega(\mathbf{r}, t) \\ & + \frac{\kappa_{\text{sc},\omega}}{4\pi} \int_{4\pi} L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}', t) \int_{4\pi} p_\omega(\mathbf{u}, \mathbf{u}') d\Omega d\Omega' \quad (\text{I.35}) \\ & + \int_{4\pi} \eta_\omega d\Omega \end{aligned}$$

où l'éventuelle dépendance spatiale et temporelle des coefficients de diffusion et d'absorption a été omise par souci de concision. La définition du vecteur flux radiatif (equation I.2) nous permet de réécrire le second terme du premier membre :

$$\int_{4\pi} \mathbf{u} \cdot \nabla L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) d\Omega = \nabla \cdot \int_{4\pi} \mathbf{u} L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) d\Omega = \nabla \cdot \mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) \quad (\text{I.36})$$

En utilisant le fait que l'intégrale sur les directions de la fonction de phase vaut 4π , d'une part, que l'intégrale du terme source est simplement la puissance S émise par unité de volume, il vient finalement pour le moment d'ordre 0 de l'ETR :

$$\frac{\partial}{\partial t} u_\omega(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot \mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) + v_E \kappa_{\text{abs},\omega}(\mathbf{r}, t) u_\omega(\mathbf{r}, t) = S(\mathbf{r}, t) \quad (\text{I.37})$$

On obtient ainsi une équation d'évolution de la densité spectrale d'énergie u_ω qui fait intervenir le vecteur flux radiatif, moment d'ordre 1 de la luminance.

Moment d'ordre 1 de l'ETR

On peut itérer le processus précédent, en calculant le moment d'ordre 1 de l'ETR pour obtenir une équation liant le vecteur flux radiatif au moment d'ordre 2 de la luminance. Il vient :

$$\begin{aligned} \frac{1}{v_E} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) + \int_{4\pi} \mathbf{u} [\mathbf{u} \cdot \nabla L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)] d\Omega = - [\kappa_{\text{abs},\omega} + \kappa_{\text{sc},\omega}] \mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) \\ + \frac{\kappa_{\text{sc},\omega}}{4\pi} \int_{4\pi} L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}', t) \int_{4\pi} \mathbf{u} p_\omega(\mathbf{u}, \mathbf{u}') d\Omega d\Omega' \end{aligned} \quad (\text{I.38})$$

Pour des raisons de symétrie, la fonction de phase $p(\mathbf{u}, \mathbf{u}')$ ne dépend que de l'angle entre \mathbf{u} et \mathbf{u}' . Cela permet d'obtenir :

$$\int_{4\pi} \mathbf{u} p_\omega(\mathbf{u}, \mathbf{u}') d\Omega = \mathbf{u}' \int_{4\pi} \mathbf{u}' \cdot \mathbf{u} p_\omega(\mathbf{u}, \mathbf{u}') d\Omega = 4\pi g \mathbf{u}' \quad (\text{I.39})$$

En reportant dans le dernier terme de l'équation I.38, on fait apparaître le vecteur flux radiatif. Le moment d'ordre 1 de l'ETR s'écrit ainsi :

$$\frac{1}{v_E} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) + [\kappa_{\text{abs},\omega} + \kappa_{\text{sc},\omega}(1 - g)] \mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) = -\nabla \cdot \int_{4\pi} \mathbf{u} \otimes \mathbf{u} L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) d\Omega \quad (\text{I.40})$$

On obtient cette fois une équation d'évolution du vecteur flux radiatif qui fait apparaître dans son membre de droite le moment d'ordre 2 de la luminance.

Relation de fermeture : Approximation P1

Une relation de fermeture peut être obtenue en développant la luminance sur une base de polynômes de Legendre. Ici, on suppose que la luminance est quasi isotrope - ce qui n'a bien sûr de sens que dans des milieux de taille L grande devant le libre parcours moyen l_{sc} . On se limite en conséquence à un développement à l'ordre 1. Ce développement nous permet de lier le moment d'ordre 2 de la luminance aux moments d'ordres inférieurs. Il s'écrit :

$$L_\omega(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) = L_\omega^0(\mathbf{r}, t) + \frac{3}{4\pi} \mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{u} \quad (\text{I.41})$$

On obtient ainsi, avec les deux premiers moments de l'ETR, un système fermé. En introduisant cette forme de la luminance dans l'équation I.40, il vient :

$$\frac{1}{v_E} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) + [\kappa_{\text{abs},\omega} + \kappa_{\text{sc},\omega}(1 - g)] \mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) = -\frac{v_E}{3} \nabla u_\omega \quad (\text{I.42})$$

Loi de Fick et équation de la diffusion

Lorsque les variations du vecteur flux radiatif sont lentes devant le temps mis par la lumière pour parcourir le libre parcours moyen – typiquement de l'ordre de la nanoseconde dans un nuage d'atomes froids passif – le premier terme de l'équation I.42 devient négligeable devant le second. On peut alors exprimer directement le vecteur flux radiatif par une loi de Fick :

$$\mathbf{q}_\omega(\mathbf{r}, t) = -\mathcal{D} \nabla u_\omega \quad (\text{I.43})$$

où le coefficient de diffusion \mathcal{D} est donné par :

$$\mathcal{D} = \frac{v_E}{3 [\kappa_{\text{abs},\omega} + \kappa_{\text{sc},\omega}(1 - g)]} \quad (\text{I.44})$$

Dans la limite de faible absorption ($\kappa_{\text{abs},\omega} \ll \kappa_{\text{sc},\omega}(1 - g)$), il se simplifie :

$$\mathcal{D} = \frac{v_E l_{\text{tr}}}{3} \quad (\text{I.45})$$

On retrouve ainsi une l'expression du coefficient de diffusion obtenue via un modèle de marche aléatoire markovienne (équation I.27), dont la taille typique des pas est cette fois donnée par la longueur de transport l_{tr} et non le libre parcours moyen l_{sc} . Dans la suite, on considèrera uniquement des diffuseurs isotropes et l'on ne distinguera plus ces deux longueurs. g vaut alors 0, de sorte que l'on peut réécrire le coefficient de diffusion :

$$\boxed{\mathcal{D} = \frac{v_E l_{\text{ext}}}{3}} \quad (\text{I.46})$$

Finalement, on obtient à partir de l'équation de conservation de l'énergie I.37 et de la loi de Fick I.43 :

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} - \mathcal{D} \Delta + v_E \kappa_{\text{abs},\omega}(\mathbf{r}, t) \right] u_\omega(\mathbf{r}, t) = S(\mathbf{r}, t) \quad (\text{I.47})$$

Nous venons de montrer que **l'équation de transfert radiatif dans un milieu diffusant de taille grande devant le libre parcours moyen se ramène**, moyennant plusieurs hypothèses (luminance quasi-isotrope, vecteur flux radiatif lentement variable) **à une équation de la diffusion**. En régime de diffusion isotrope, le coefficient de diffusion s'exprime alors en fonction de la vitesse de l'énergie et de la longueur d'extinction.

Conditions aux limites de l'équation de la diffusion

L'écriture des conditions aux limites de l'équation de la diffusion est quelque peu problématique ; en effet, la densité spectrale d'énergie hors du milieu n'est à priori pas connue.

En revanche, on peut facilement écrire des conditions aux limites sur la luminance. On montre ainsi qu'il est équivalent d'imposer l'annulation des luminances entrantes dans le milieu sur une surface donnée et d'écrire une condition d'annulation de la densité spectrale d'énergie à une distance fixée d de cette surface[Case 1967]. Pour un milieu sphérique passif de diamètre L , formé de diffuseurs isotropes, on a :

$$d = \frac{\xi}{2\xi + \frac{L}{l_{sc}}} L \quad (\text{I.48})$$

où $\xi \simeq 0.71$ est une constante. Finalement, lorsque la taille du milieu est grande devant le libre parcours moyen de diffusion, on peut simplement imposer $u_\omega = 0$ sur la surface du milieu ; on décrira ainsi les systèmes non soumis à un éclairage extérieur.

I.2.4 Coefficient de diffusion et vitesse de l'énergie

La dérivation précédente du modèle diffusif fait appel à des hypothèses plus ou moins justifiées, en particulier l'approximation P1. L'équation de la diffusion est relativement robuste, au sens où une équation de transport de la lumière de cette forme est obtenue via de nombreuses approches en régime de diffusion multiple. Cependant, l'expression du coefficient de diffusion a quant à elle été soumise à controverse. A notre connaissance, l'expression I.45 est communément admise en régime instationnaire [Pierrat 2006]. La question est plus délicate en régime stationnaire et en présence d'absorption [Aronson 1999], mais a été clarifiée par des approches basées sur la comparaison des solutions de l'ETR et de l'équation de la diffusion dans des géométries particulières [Graaff 2000, Elaloufi 2003, Pierrat 2006]. Dans ce régime, le coefficient de diffusion est non-local et dépend du coefficient d'absorption. Sa valeur peut être obtenue en résolvant – parfois numériquement – une équation de dispersion provenant de l'équation de transfert radiatif [Pierrat 2007]. L'expression I.45 reste valable en l'absence d'absorption[Elaloufi 2003].

Dans la suite, on travaillera uniquement dans des régimes de diffusion isotrope et en l'absence d'absorption, ou dans des cas où l'on pourra assimiler un processus d'absorption suivi de l'émission d'un photon source à un processus de diffusion. En conséquence, on utilisera l'expression I.46 du coefficient de diffusion. Elle ne fait intervenir que la longueur d'extinction, qui a le mérite de rester parfaitement définie dans un milieu diffusant comportant des sources, y compris lorsque la puissance qu'elles émettent varie de façon non linéaire avec la densité spectrale d'énergie.

Une difficulté plus importante apparaît en pratique lorsque l'on cherche à déterminer la valeur de la vitesse de l'énergie qui intervient dans l'expression du coefficient de diffusion. En raisonnant en termes de marches aléatoires, nous avons vu que cette vitesse n'est

autre que le rapport de la durée et de la longueur moyenne d'un pas :

$$v_E = \frac{l_{sc}}{\langle \Delta\tau \rangle} \quad (\text{I.49})$$

Qualitativement, on peut décrire la durée associée à ce processus de diffusion comme la somme d'un délai lié au processus de diffusion - délai de Wigner [Wigner 1955] - et d'un temps associé à la propagation de la lumière entre deux diffuseurs [van Albada 1991, Cwilich 1992]. Le délai de Wigner est associé au déphasage introduit par le processus de diffusion ; il devient non négligeable pour une interaction résonante avec les diffuseurs [Labeyrie 2003]. Le temps associé à la propagation de la lumière entre deux diffuseurs est quant à lui le rapport du libre parcours moyen et d'une vitesse de propagation. Nous avons déjà mentionné que, dans un milieu conservatif, celle-ci est égale à la vitesse de groupe. Cependant, en présence de gain ou d'absorption, qui peuvent conduire à une déformation d'un pulse de lumière, cette identité n'est plus valable [Gerasik 2010]. La détermination de la durée associée à un processus de diffusion dans ce cas reste un problème ouvert à l'heure actuelle.

Pour un milieu passif d'atomes à deux niveaux, le délai de Wigner et le temps associé à la propagation dépendent tous deux du désaccord ; leur somme, en revanche, est constante, et vaut $\langle \Delta\tau \rangle = 1/\Gamma$, où Γ est la largeur de l'état excité [Labeyrie 2003].

I.3 Diffusion dans une sphère en présence de gain

Dans ce paragraphe, nous nous intéresserons aux solutions de l'équation de diffusion pour une sphère homogène de diffuseurs passifs ou en présence de gain. Nous pourrions ainsi mettre en évidence le phénomène de bombe photonique, d'abord par une approche instationnaire, puis en étudiant le régime permanent d'un système avec source.

I.3.1 Solution en régime instationnaire : la bombe photonique

On considère un milieu sphérique homogène \mathcal{S} , de centre O et de rayon R , contenant une densité n_0 de diffuseurs de section efficace de diffusion σ_{sc} . On suppose par ailleurs que le milieu donne lieu à un gain vers l'avant ou un gain diffus, et que l'on peut associer à chaque diffuseur une section efficace de gain σ_g . Le système étant invariant par rotation de centre O , l'équation de la diffusion peut être réécrite en coordonnées sphériques (r, θ, ϕ) :

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} - \mathcal{D} \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) - v_E n \sigma_g \right] u_\omega(r, t) = 0 \quad (\text{I.50})$$

Le second membre est nul puisque le milieu ne comporte pas de sources. Si l'on impose l'annulation de la densité spectrale d'énergie aux limites du milieu ($u_\omega(R, t) = 0$), cette équation admet une solution générale de la forme [Letokhov 1968] :

$$u_\omega(r, t) = \sum_n a_n \Psi_n(r) \exp [-(\mathcal{D} B_n^2 - v_E n_0 \sigma_g)t] \quad (\text{I.51})$$

où B_n et Ψ_n sont les valeurs et fonctions propres solutions de l'équation :

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right] \Psi_n(r) + B_n^2 \Psi_n(r) = 0 \quad (\text{I.52})$$

avec la condition aux limites $\Psi_n(R) = 0$. Ces solutions s'écrivent [Weinberg 1958],

$$\begin{cases} \Psi_n(r) = \frac{1}{4\pi Rr} \sin\left[\frac{n\pi r}{R}\right] \\ B_n = \frac{n\pi}{R} \end{cases} \quad (\text{I.53})$$

Notons que les fonctions $\psi_n : \mathbf{r} \rightarrow \Psi_n(r)$ forment une base orthogonale normalisée de l'espace des fonctions de \mathcal{R}^3 à valeur dans \mathcal{R} , à symétrie sphérique et de support \mathcal{S} , muni du produit scalaire :

$$\langle f | g \rangle = \int_{\mathcal{S}} f(\mathbf{r})g(\mathbf{r})d\mathbf{r} \quad (\text{I.54})$$

Désexcitation radiative du système passif

L'étude de la décroissance radiative du système passif (cas $\sigma_g = 0$) vise à différencier les différents mécanismes de désexcitation collective pouvant intervenir dans un système diffusant : piégeage radiatif par diffusion multiple, localisation d'Anderson, super et sous-radiance,... Une façon couramment utilisée de décrire cette désexcitation est de déterminer la probabilité que le système possède une durée de vie $\tau = 1/\Gamma$ – correspondant à une décroissance exponentielle de l'énergie stockée dans le système.

Supposons qu'à l'instant initial, la densité d'énergie dans le milieu soit uniforme :

$$u_\omega^0(r) = \frac{3U_0}{(4\pi R^3)} \quad (\text{I.55})$$

où U_0 est l'énergie totale stockée. Nous pouvons déterminer l'évolution de cette densité spectrale en la décomposant sur les modes propres du système (équation I.51). Les coefficients a_n qui interviennent dans cette décomposition sont déterminés par la distribution d'énergie initiale :

$$a_n = \langle u_\omega^0 | \Psi_n \rangle = \frac{3U_0}{4\pi R^4} \int_0^R r \sin\left[\frac{n\pi r}{R}\right] dr \quad (\text{I.56})$$

D'où il vient :

$$a_n = (-1)^{n+1} \frac{3U_0}{4\pi^2 R^2} \frac{1}{n} \quad (\text{I.57})$$

L'énergie totale stockée dans le milieu à l'instant t est alors donnée par :

$$\begin{aligned} U(t) &= \int_S u_\omega(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r} \\ &= \sum_n (-1)^{n+1} \frac{3U_0}{\pi R^2} \frac{1}{n} \int_0^R r \sin\left[\frac{n\pi r}{R}\right] dr \exp[-\mathcal{D}B_n^2 t] \\ &= U_0 \sum_n \frac{3}{\pi^2 n^2} \exp[-\Gamma_n t] \end{aligned} \quad (\text{I.58})$$

où l'on a défini $\Gamma_n = \mathcal{D} \left(\frac{n\pi}{R}\right)^2$. On obtient finalement :

$$U(t) = U_0 \sum_n \frac{3\mathcal{D}}{R^2} \Gamma_n^{-1} \exp[-\Gamma_n t] \quad (\text{I.59})$$

Finalement, une loi d'échelle décrivant la probabilité d'occurrence d'un taux de décroissance Γ peut être obtenue en prenant en compte le poids relatif de chaque mode et la densité de modes dans un intervalle $[\Gamma, \Gamma + d\Gamma]$ donné. En traitant n comme une variable continue, et pour $\Gamma > \Gamma_0$, on obtient :

$$\begin{cases} \frac{d\Gamma_n}{dn} = 2\mathcal{D} \frac{\pi^2}{R^2} n = 2\frac{\pi}{R} \sqrt{\mathcal{D}} \sqrt{\Gamma_n} \\ P(\Gamma) \propto \Gamma^{-1} \frac{dn}{d\Gamma} \end{cases} \quad (\text{I.60})$$

d'où

$$\boxed{P(\Gamma) \propto \Gamma^{-\frac{3}{2}}} \quad (\text{I.61})$$

On retrouve ainsi le résultat classique selon lequel, en régime diffusif, la probabilité d'obtenir un taux de désexcitation Γ du système décroît comme $\Gamma^{-3/2}$. Notons cependant que **ce résultat est très dépendant de la forme de la distribution initiale d'énergie dans le système**, qui détermine l'importance relative des différents modes de désexcitation, et des conditions aux bords. Par ailleurs, cette loi n'est valable que dans une certaine plage de taux de décroissance. D'une part, il n'existe pas de mode associé aux valeurs de Γ plus faibles que $\mathcal{D}(\pi/R)^2$, qui correspond au taux de décroissance du mode fondamental. D'autre part, aux temps très courts ($\Gamma \sim v_E/l_{tr}$), les hypothèses du modèle diffusif sont brisées.

La bombe photonique

Pour l'étude du laser aléatoire, on s'intéresse à la dynamique du système en présence de gain. L'équation I.51 nous montre que la durée de vie du mode n solution de l'équation de la diffusion est alors donnée par :

$$\tau_n = \frac{1}{\mathcal{D} B_n^2 - v_E n_0 \sigma_g} \quad (\text{I.62})$$

On constate immédiatement que cette durée de vie devient négative - c'est à dire que le mode s'amplifie au lieu de décroître - dès que :

$$v_E n_0 \sigma_g > \mathcal{D} B_n^2 \quad (\text{I.63})$$

Ainsi, la densité spectrale d'énergie dans le système peut croître, et s'emballer jusqu'à saturation du gain - non prise en compte dans ce modèle. Une condition de seuil est obtenue en considérant le mode associé à la plus petite valeur propre B_n , correspondant ici à $n = 1$. En utilisant la définition de la longueur de gain $l_g = 1/(n_0 \sigma_g)$ et l'expression I.45 du coefficient de diffusion, on obtient [Letokhov 1968] :

$$R > \pi \sqrt{\frac{l_{sc} l_g}{3}} \quad (\text{I.64})$$

Au delà de cette taille critique du milieu, la densité spectrale d'énergie s'emballle : c'est la bombe photonique. Le régime associé atteint après saturation du gain n'est autre que le laser aléatoire. La condition de seuil peut encore être réécrite en fonction de l'épaisseur optique \tilde{b}_0 que possède le milieu dans une situation de référence où tous les diffuseurs ont une section efficace d'extinction σ_0 :

$$\boxed{\tilde{b}_0 > 2\pi \sqrt{\frac{\sigma_0^2}{3\sigma_{sc}\sigma_g}}} \quad (\text{I.65})$$

Notons que le membre de droite de cette inégalité ne fait plus apparaitre que des grandeurs caractéristiques d'un diffuseur. Toute les informations liées au dimensionnement du milieu sont résumées par l'épaisseur optique.

La condition de seuil précédente a été obtenue en imposant l'annulation de la densité spectrale d'énergie à une distance R du centre du nuage, correspondant au rayon de l'échantillon sphérique considéré. Cette condition aux limites permet de bien décrire le régime fortement diffusif; toutefois, nous avons vu au paragraphe I.2.3 qu'il est possible de décrire une plus large gamme de paramètres - et notamment les régimes plus faiblement diffusifs - en utilisant la condition aux limites :

$$u(R_{\text{eff}}, t) = 0 \quad \text{avec} \quad R_{\text{eff}} = (1 + \eta)R \quad \text{et} \quad \eta = \frac{2\xi}{2\xi + \frac{2R}{l_{sc}}} = \frac{2\xi}{2\xi + \tilde{b}_0 \sigma_{sc}/\sigma_0}$$

Cela conduit à la condition de seuil :

$$\eta \tilde{b}_0 > 2\pi \sqrt{\frac{\sigma_0^2}{3\sigma_{sc}\sigma_g}} \quad (\text{I.66})$$

La résolution d'une équation du second degré permet de réécrire cette équation sous la forme moins lisible mais plus directement exploitable :

$$\boxed{\begin{aligned} \sigma_g &> 0 \\ \tilde{b}_0 &> \frac{[f - g] + \sqrt{[f - g]^2 + 2gf}}{2} \\ \text{avec } f &= 2\pi \sqrt{\frac{\sigma_0^2}{3\sigma_{sc}\sigma_g}} \quad \text{et} \quad g = \frac{2\xi\sigma_0}{\sigma_{sc}} \end{aligned}} \quad (\text{I.67})$$

Ce résultat est à la base des études de seuil que nous effectuerons par la suite. Nous chercherons ainsi à minimiser la taille critique du milieu nécessaire à l'obtention du laser aléatoire, en déterminant les conditions de pompage donnant le plus faible produit possible de la longueur de gain et du libre parcours moyen.

I.3.2 Régime stationnaire en présence de sources

Les expériences que nous étudierons par la suite, et qui visent à mettre en évidence le régime de laser aléatoire, sont effectuées en régime stationnaire. Pour comprendre nos observations, nous aurons besoin déterminer l'impact du rayonnement piégé sur l'émission des atomes, et donc de connaître le profil de la densité spectrale d'énergie dans notre système. Dans le cas simple où les paramètres de l'équation de la diffusion sont constants dans le milieu, ce profil peut être déterminé analytiquement.

Considérons la même sphère que précédemment, contenant à présent une densité homogène de sources lumineuses - dans la suite, chaque atome du gaz constituera une source. L'équation de la diffusion, en régime stationnaire, devient :

$$\mathcal{D} \left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right] u_\omega(r, t) + v_E n_0 \sigma_g u_\omega(r) = -S \quad (\text{I.68})$$

Ses solutions sont de la forme :

$$u_\omega(r) = \frac{S}{n_0 v_E \sigma_g} + A \frac{\exp[-r \sqrt{|n_0 v_E \sigma_g|}]}{r} + B \frac{\exp[r \sqrt{|n_0 v_E \sigma_g|}]}{r} \quad (\text{I.69})$$

En imposant les conditions :

$$\begin{cases} u_\omega(R) = 0 \\ u_\omega(0) < \infty \end{cases} \quad (\text{I.70})$$

et en utilisant l'expression 1.45 du coefficient de diffusion, on obtient finalement, en présence d'absorption ($\sigma_g < 0$) :

$$u_\omega(r) = \frac{S l_{\text{abs}}}{v_E} \left[1 - \frac{R \operatorname{sh}[r\sqrt{3}/\sqrt{l_{\text{sc}}l_{\text{abs}}]}}{r \operatorname{sh}[R\sqrt{3}/\sqrt{l_{\text{sc}}l_{\text{abs}}}]} \right] \quad (\text{I.71})$$

Pour un milieu conservatif ($\sigma_g = 0$) :

$$u_\omega(r) = \frac{S}{2v_E l_{\text{sc}}} (R^2 - r^2) \quad (\text{I.72})$$

Et en présence de gain ($\sigma_g > 0$) :

$$u_\omega(r) = \frac{S l_g}{v_E} \left[\frac{R \sin[r\sqrt{3}/\sqrt{l_{\text{sc}}l_g}]}{r \sin[R\sqrt{3}/\sqrt{l_{\text{sc}}l_g}]} - 1 \right] \quad (\text{I.73})$$

La figure 1.5 montre l'allure du profil de la densité spectrale d'énergie dans chacun de ces cas. En présence de gain, la solution obtenue devient par endroits négative dès que $R > \pi\sqrt{l_{\text{sc}}l_g}/3$. L'équation de la diffusion n'admet alors plus de solution physique valide vérifiant les conditions 1.70. La raison en est simple : le système est au-dessus du seuil du laser aléatoire. Si l'on ne prend pas en compte la saturation du gain, la condition $u_\omega(0) < \infty$ ne peut plus être vérifiée. Ainsi, nous avons indirectement retrouvé par un calcul effectué en régime stationnaire la condition de seuil de Letokhov établie en régime instationnaire (voir aussi [Pierrat 2007] pour une discussion sur l'équivalence entre ces deux approches).

I.4 Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous avons décrit sur une base phénoménologique les principaux processus d'interaction lumière-matière dans un milieu semi-transparent : absorption, émission, et diffusion. Une description basée sur l'optique géométrique nous a ensuite permis de réaliser un bilan d'énergie prenant en compte ces phénomènes, et d'obtenir ainsi une équation de transport de la lumière : **l'équation de transfert radiatif**. Dans un milieu essentiellement diffusant, celle-ci peut être simplifiée, et devenir une **équation de la diffusion**.

Nous avons ensuite étudié les solutions de cette équation de la diffusion en présence de gain. Cela nous a permis de montrer que, lorsque le milieu dépasse une certaine taille critique, la densité spectrale d'énergie s'emballe et croît jusqu'à ce que le gain sature. Pour un milieu sphérique homogène, l'épaisseur optique critique s'écrit :

$$\tilde{b}_0 > 2\pi \sqrt{\frac{\sigma_0^2}{3\sigma_{\text{sc}}\sigma_g}} \quad (\text{I.74})$$

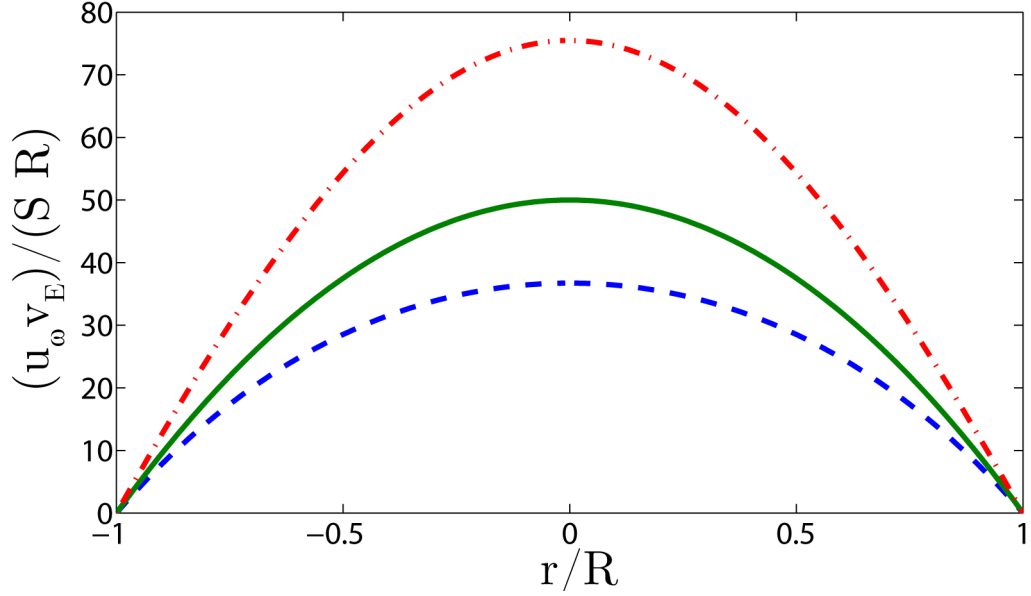


Figure 1.5 – **Profil de la densité spectrale d'énergie dans une sphère de rayon R** obtenu à partir de l'équation de la diffusion, pour un libre parcours moyen $l_{sc} = R/100$. En bleu pointillés : Cas avec absorption ($l_{abs} = 100R$) ; En vert continu : Milieu purement diffusant ; En rouge pointillés : Cas avec gain ($l_g = 100R$).

C'est la **condition de seuil Letokhov du laser aléatoire**. Toute la deuxième partie de cette thèse est dédiée à la recherche d'une configuration où, dans un nuage d'atomes froids, cette condition est vérifiée.

Propriétés optiques d'un atome

Le chapitre précédent nous a permis d'établir des modèles de transport de la lumière dans un milieu diffusant, les propriétés élémentaires de l'interaction entre la lumière et le milieu étant supposées connues. Pour pouvoir appliquer ces modèles à un gaz éclairé à résonance, il nous faut à présent décrire l'interaction atome lumière. On pourra alors obtenir les paramètres tels que les sections efficaces de diffusion, d'absorption, ou encore le coefficient d'émission, nécessaires à nos modèles.

Dans ce deuxième chapitre, nous commencerons par introduire un modèle particulier de l'interaction atome lumière : les équations de Bloch optiques. Elles sont obtenues via une approche de type matrice densité, modifiée pour prendre en compte le couplage de l'atome à un réservoir extérieur au système considéré, le vide. Dans un deuxième temps, nous verrons comment déduire de la matrice densité d'un atome certaines propriétés optiques du milieu. En particulier, on s'attachera à réaliser un bilan des échanges d'énergie entre un atome et le champ, applicable dans un grand nombre de situations, notamment lorsque la réponse du milieu est non linéaire. L'approche est initialement présentée pour le cas simple d'atomes à deux niveaux, puis étendue en fin de chapitre à des atomes multi-niveaux.

II.1 Equations de Bloch Optiques (EBO) pour un atome à deux niveaux

On considère un atome à deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$, d'énergies respectives E_a et E_b , telles que $E_b - E_a = \hbar\omega_0$ (figure II.1). L'atome, à la position \mathbf{r} , est éclairé par un faisceau créant un champ $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ – dans la suite, on considère plus particulièrement une superposition d'ondes planes monochromatiques créant des champs \mathbf{E}_j , de fréquences ω_j et de vecteurs d'onde quelconques k_j , mais de polarisations \mathbf{e}_z identiques, de sorte qu'elles sont toutes susceptibles d'exciter la transition atomique considérée. On cherche à présent à établir une équation d'évolution de la matrice densité ρ de l'atome, en traitant le champ incident de façon classique (voir également [Allen 1987, Cohen-Tannoudji 2001,

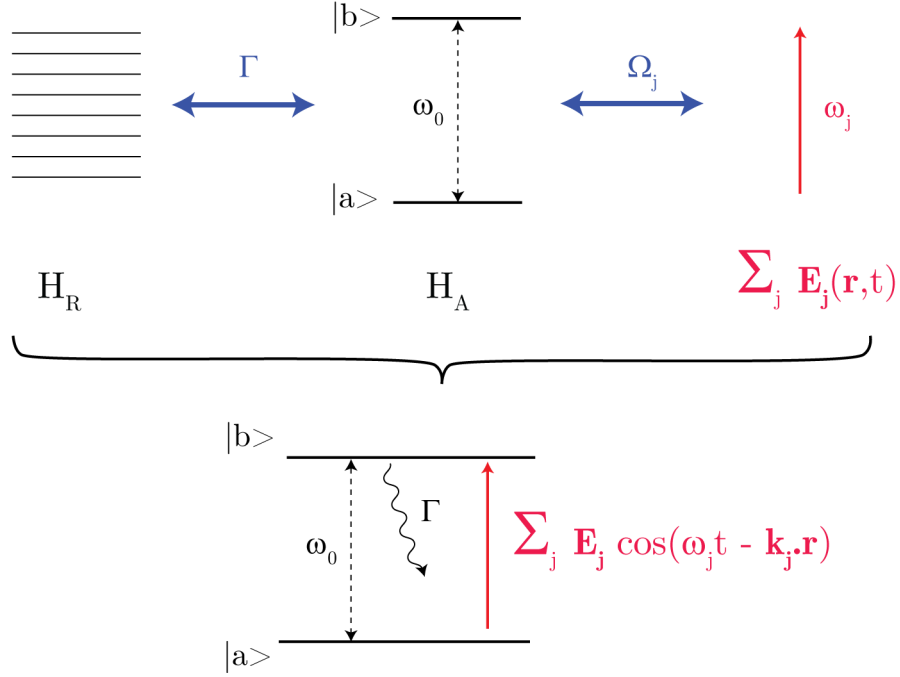


Figure II.1 – **Ensemble de trois systèmes couplés considéré.** A gauche : modes du vide ; au centre : atome à deux niveaux ; à droite : champ incident, superposition d'une ou plusieurs ondes planes monochromatiques de pulsations ω_j . L'écart d'énergie entre les deux niveaux atomiques vaut $E_b - E_a = \hbar\omega_0$, où ω_0 est la fréquence propre de la transition considérée. Γ est le taux de décroissance radiative de l'état excité $|b\rangle$ dû au couplage avec les modes du vide.

Budker 2004]).

Par commodité, on introduit les opérateurs :

$$\mathcal{S}_{aa} = |a\rangle\langle a| \quad \mathcal{S}_{bb} = |b\rangle\langle b| \quad \mathcal{S}_{ab} = |b\rangle\langle a| \quad \mathcal{S}_{ba} = |a\rangle\langle b| \quad (\text{II.1})$$

dont les valeurs moyennes correspondent aux éléments de la matrice densité.

L'hamiltonien de l'atome en présence du potentiel créé par le champ extérieur s'écrit, dans l'approximation dipolaire électrique :

$$H = H_A - \mathbf{D} \cdot \sum_j \mathbf{E}_j(\mathbf{r}, t) \quad (\text{II.2})$$

où \mathbf{r} est la position de l'atome et H_A l'hamiltonien de l'atome isolé :

$$H_A = \hbar\omega_0 |b\rangle\langle b| \quad (\text{II.3})$$

\mathbf{D} enfin est l'opérateur moment dipolaire atomique. Notons que, l'atome étant centrosymétrique, ses états propres ne peuvent posséder de moment dipolaire. D'autre part,

\mathbf{D} est hermitien - le moment dipolaire est une observable - de sorte que, pour un atome à deux niveaux, il est finalement de la forme :

$$\mathbf{D} = \mathbf{e}_z D_{ab} |a\rangle\langle b| + \text{h.c.} \quad (\text{II.4})$$

En l'absence de couplage du système au vide, l'équation d'évolution de la matrice densité de l'atome est simplement donnée par l'équation de Schrödinger :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} \left[H_A - \mathbf{D} \cdot \sum_j \mathbf{E}_j(\mathbf{r}, t), \rho \right] \quad (\text{II.5})$$

Cependant, l'évolution subie par l'atome n'est pas hamiltonienne du fait de son couplage avec les modes du vide. Ainsi, des termes d'amortissements supplémentaires apparaissent dans les équations d'évolution de la matrice densité. Pour un atome à deux niveaux, ils décrivent la relaxation des populations de l'état excité vers l'état fondamental par émission spontanée d'une part, la décroissance des cohérences qu'elle induit d'autre part. L'annexe A établit l'expression de ces termes de relaxation à partir d'une description hamiltonienne du système atome + champ. En notant $\Omega(\mathbf{r}, t) = D_{ab}E(\mathbf{r}, t)/\hbar$, les équations d'évolution des termes de la matrice densité s'écrivent finalement dans la base $|a\rangle, |b\rangle$:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle \mathcal{S}_{bb} \rangle}{\partial t} &= i\Omega(\mathbf{r}, t) [\langle \mathcal{S}_{ba} \rangle - \langle \mathcal{S}_{ab} \rangle] - \Gamma \langle \mathcal{S}_{bb} \rangle \\ \frac{\partial \langle \mathcal{S}_{ab} \rangle}{\partial t} &= i\omega_0 \langle \mathcal{S}_{ab} \rangle - i\Omega(t) [\langle \mathcal{S}_{bb} \rangle - \langle \mathcal{S}_{aa} \rangle] - \frac{\Gamma}{2} \langle \mathcal{S}_{ab} \rangle \end{aligned} \quad (\text{II.6})$$

où Γ le taux de relaxation radiative du niveau excité. On a par ailleurs :

$$\begin{aligned} \langle \mathcal{S}_{aa} \rangle + \langle \mathcal{S}_{bb} \rangle &= 1 \quad (\text{conservation de la population totale}) \\ \langle \mathcal{S}_{ab} \rangle &= \langle \mathcal{S}_{ba} \rangle^* \quad (\text{par définition de la matrice densité}) \end{aligned} \quad (\text{II.7})$$

II.6 et II.7 forment les **équations de Bloch optiques**. Elles peuvent encore être mises sous la forme :

$$\frac{\partial \langle \mathcal{S} \rangle(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \mathcal{B}(\mathbf{r}, t) \langle \mathcal{S} \rangle(\mathbf{r}, t) + \lambda(\mathbf{r}, t) \quad (\text{II.8})$$

$$\text{avec } \mathcal{S} = \begin{pmatrix} \mathcal{S}_{bb} \\ \mathcal{S}_{ab} \\ \mathcal{S}_{ba} \end{pmatrix}, \quad \mathcal{B}(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} -\Gamma & -i\Omega(\mathbf{r}, t) & i\Omega(\mathbf{r}, t) \\ -2i\Omega(\mathbf{r}, t) & -\frac{\Gamma}{2} + i\omega_0 & 0 \\ 2i\Omega(\mathbf{r}, t) & 0 & -\frac{\Gamma}{2} + i\omega_0 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \lambda(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} 0 \\ i\Omega(\mathbf{r}, t) \\ -i\Omega(\mathbf{r}, t) \end{pmatrix}$$

Le système ci-dessus peut être résolu numériquement dans le domaine temporel. Cependant, lorsque l'atome est éclairé par une superposition d'ondes planes monochromatiques et quasi-résonantes, il est possible de le simplifier considérablement. C'est ce que nous allons montrer maintenant.

II.1.1 Atome soumis à une onde plane monochromatique quasi-résonante

Le cas de l'atome à deux niveaux soumis à une onde plane monochromatique P d'amplitude E_P , de pulsation de Rabi $\Omega_P = D_{ab}E_P/\hbar$ et de fréquence ω_P , quasi-résonante, est un cas école. Ce système étant invariant par translation dans l'espace, on considère un atome à l'origine des coordonnées. On introduit le changement d'opérateurs :

$$\begin{aligned} S_{aa} &= \mathcal{S}_{aa} \\ S_{bb} &= \mathcal{S}_{bb} \\ S_{ab} &= \mathcal{S}_{ab} \exp[-i\omega_P t] \\ S_{ba} &= S_{ab}^\dagger \end{aligned} \quad (\text{II.9})$$

Les équations de Bloch optiques deviennent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle S_{bb} \rangle}{\partial t} &= i \frac{\Omega_P}{2} (\langle S_{ba} \rangle - \langle S_{ab} \rangle) - \Gamma \langle S_{bb} \rangle + i \frac{\Omega_P}{2} (\langle S_{ba} \rangle e^{-i2\omega_P t} - \langle S_{ab} \rangle e^{i2\omega_P t}) \\ \frac{\partial \langle S_{ab} \rangle}{\partial t} &= -i(\omega_P - \omega_0) \langle S_{ab} \rangle + i \frac{\Omega_P}{2} (1 + e^{-i2\omega_P t}) (\langle S_{bb} \rangle - \langle S_{aa} \rangle) - \frac{\Gamma}{2} \langle S_{ab} \rangle \end{aligned} \quad (\text{II.10})$$

Les termes grisés dans l'équation ci-dessus oscillent à une fréquence double de la fréquence optique ω_P , de sorte que leur effet peut se moyennner rapidement à zéro. L'approximation de l'onde tournante consiste à simplement les négliger [Bloch 1940]. Elle reste valide tant que la pulsation de Rabi du laser et son désaccord restent faibles devant les fréquences optiques [Bloch 1940, Agarwal 1971].

Dans l'approximation de l'onde tournante, les équations II.10 ne font plus apparaître de terme dépendant du temps. Leur solution stationnaire s'obtient en inversant simplement un système linéaire ; il vient :

$$\begin{aligned} \langle S_{bb} \rangle &= \frac{1}{2} \frac{s}{1+s} \\ \langle S_{ab} \rangle &= \frac{s}{1+s} \left[\frac{\delta_P}{\Omega_P} + i \frac{\Gamma}{2\Omega_P} \right] \end{aligned} \quad (\text{II.11})$$

où $\delta_P = \omega_P - \omega_0$ est le désaccord du laser P par rapport à la résonance atomique et s le paramètre de saturation :

$$s = \frac{\Omega_P^2/2}{\delta_L^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (\text{II.12})$$

On retrouve ainsi la réponse bien connue d'un atome à deux niveaux. En particulier, on constate que cette réponse est fortement non linéaire vis à vis de l'intensité du laser incident, du fait par exemple de la saturation de la population de l'état excité $\langle S_{bb} \rangle$ aux fortes intensités laser (fortes pulsations de Rabi). Notons que le temps mis par le système pour atteindre ce régime stationnaire est typiquement de l'ordre du temps d'amortissement $1/\Gamma$.

II.1.2 Atome soumis à une superposition d'ondes planes - Matrices de Floquet

La résolution des équations de Bloch optiques devient plus difficile lorsque l'atome est soumis à une superposition d'ondes planes. En effet, l'approximation de l'onde tournante ne suffit plus à supprimer les termes dépendants du temps. Pour trouver une solution approchée aux équations de Bloch optiques dans ce cas, on commence par réécrire le système sous la forme de trois équations différentielles linéaires régissant l'évolution de trois variables indépendantes. On a par exemple, dans l'approximation de l'onde tournante :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \langle S_{bb} \rangle}{\partial t} &= -\Gamma \langle S_{bb} \rangle + i \sum_j \Omega_j \left(e^{i(\Delta_j t - \mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r})} \langle S_{ba} \rangle - e^{-i(\Delta_j t - \mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r})} \langle S_{ab} \rangle \right) \\
\frac{\partial \langle S_{ab} \rangle}{\partial t} &= - \left(i\delta_P + \frac{\Gamma}{2} \right) \langle S_{ab} \rangle - i \sum_j \Omega_j e^{i(\Delta_j t - \mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r})} (2\langle S_{bb} \rangle - 1) \\
\frac{\partial \langle S_{ba} \rangle}{\partial t} &= \left(i\delta_P - \frac{\Gamma}{2} \right) \langle S_{ba} \rangle + i \sum_j \Omega_j e^{-i(\Delta_j t - \mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r})} (2\langle S_{bb} \rangle - 1)
\end{aligned} \tag{II.13}$$

Δ_j est le désaccord du laser j par rapport au laser P choisi comme référence de fréquence, δ_P le désaccord de cette référence par rapport à la transition atomique, Ω_j la pulsation de Rabi du laser j . On peut alors décomposer les solutions en séries de Fourier – on parle dans ce contexte de décomposition de Floquet. Les équations précédentes donnent un système linéaire de dimension infinie. En négligeant les composantes de très hautes et très basses fréquences, on peut tronquer ce système, puis l'inverser pour obtenir les solutions recherchées [Ficek 1993, Yoon 1999, Michaud 2008].

Ici, on se limite au cas de trois lasers incidents de fréquences distinctes – qui suffit à nos utilisations futures. On a alors :

$$\langle S_{nm} \rangle(\mathbf{r}, t) = \sum_{k, l=-\infty}^{+\infty} \langle S_{nm} \rangle_{kl}(\mathbf{r}) \exp[i(k\Delta_1 + l\Delta_2)t] \tag{II.14}$$

où n, m représentent deux états quelconques. Notons que cette série n'est correctement définie que pour des désaccords Δ_1 et Δ_2 qui ne sont pas en rapport rationnel. Cependant, les solutions obtenues restent valables par continuité pour toutes les valeurs des désaccords [Yoon 1999]. En introduisant les pulsations de Rabi complexes

$$\tilde{\Omega}_j = \Omega_j \exp[-i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}] \tag{II.15}$$

on peut finalement écrire le système linéaire à inverser :

$$\begin{aligned}
 \langle S_{bb} \rangle_{kl} &= i \left[\tilde{\Omega}_P (\langle S_{ba} \rangle_{kl} - \langle S_{ab} \rangle_{kl}) + \tilde{\Omega}_1 (\langle S_{ba} \rangle_{(k-1)l} - \langle S_{ab} \rangle_{(k+1)l}) \right. \\
 &\quad \left. + \tilde{\Omega}_2 (\langle S_{ba} \rangle_{k(l-1)} - \langle S_{ab} \rangle_{k(l+1)}) \right] / \left[\Gamma + ik\Delta_1 + il\Delta_2 \right] \\
 \langle S_{ab} \rangle_{kl} &= -i \left[\tilde{\Omega}_P (2\langle S_{bb} \rangle_{kl} - \delta_{0k}\delta_{0l}) + \tilde{\Omega}_1 (2\langle S_{bb} \rangle_{(k-1)l} - \delta_{1k}\delta_{0l}) \right. \\
 &\quad \left. + \tilde{\Omega}_2 (2\langle S_{bb} \rangle_{k(l-1)} - \delta_{0k}\delta_{1l}) \right] / \left[\frac{\Gamma}{2} + i\delta_P + ik\Delta_1 + il\Delta_2 \right] \\
 \langle S_{ba} \rangle_{kl} &= \langle S_{ab} \rangle_{(-k)(-l)}
 \end{aligned} \tag{II.16}$$

La résolution numérique de ces équations permet de déterminer la réponse d'un atome soumis à une superposition de lasers monochromatiques – c'est à dire d'obtenir la matrice densité de l'atome. Nous verrons au chapitre suivant qu'elle permet par exemple la mise en évidence de phénomènes de gain ou de mélange à quatre ondes dans un gaz d'atomes à deux niveaux. Remarquons que la réponse d'un atome peut bien évidemment dépendre de sa position – par exemple lorsque l'échantillon est soumis à une onde stationnaire. Les équations ci-dessus permettent de prendre en compte cette dépendance, à condition bien sûr de les associer à un modèle de transport adapté.

II.2 Diffusion par un atome à deux niveaux

II.2.1 Propriétés générales de la lumière diffusée

On cherche à présent à déterminer les caractéristiques optiques d'un gaz d'atomes indépendants à partir de la connaissance de la matrice densité. Dans ce paragraphe, nous allons tenter de décrire le rayonnement de l'atome en régime permanent ; nous verrons que le caractère quantique de l'atome joue un rôle majeur dans ses caractéristiques d'émission.

Description du champ rayonné par le dipôle atomique

Continuons à travailler dans le cadre de l'approximation dipolaire, utilisée pour dériver les équations de Bloch optiques, et considérons un atome à l'origine des coordonnées. Classiquement, le champ rayonné au point \mathbf{r}_d est alors proportionnel à la dérivée seconde du moment dipolaire atomique \mathbf{d} :

$$\mathbf{E}_d(\mathbf{r}_d, t) = \eta(\mathbf{r}_d) \ddot{\mathbf{d}}(t - \frac{r_d}{c}) \tag{II.17}$$

avec par exemple dans l'approximation du champ lointain :

$$\eta(\mathbf{r}_d) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \left[\frac{1}{r_d} - \frac{\mathbf{r}_d \cdot \mathbf{r}_d}{r_d^3} \right] \quad (\text{II.18})$$

où le \cdot dénote l'opérateur produit scalaire. Dans une description quantique du champ, une relation semblable lie la partie de l'opérateur champ $\hat{\mathbf{E}}_d$ liée au rayonnement du dipôle à l'opérateur moment dipolaire atomique $\hat{\mathbf{D}}$; par exemple en champ lointain, et en ne considérant que le terme dominant dans la dérivée temporelle du moment dipolaire [Mandel 1995, p. 767] :

$$\hat{\mathbf{E}}_d(\mathbf{r}_d, t) = \frac{\omega_0^2}{4\pi\epsilon_0 c^2} \left[\frac{1}{r_d} - \frac{\mathbf{r}_d \cdot \mathbf{r}_d}{r_d^3} \right] \hat{\mathbf{D}}(t - \frac{r_d}{c}) \quad (\text{II.19})$$

Dans la suite de ce paragraphe, on se place dans l'approximation du champ lointain de Fraunhofer pour tous les atomes du gaz. Les champs rayonnés en un point de l'espace par chacun des atomes possèdent alors la même polarisation. Pour le champ rayonné vers l'avant, cette polarisation est aussi celle du champ incident (selon \mathbf{e}_z). On simplifie les calculs en l'omettant ; on écrit ainsi :

$$\hat{E}_d(\mathbf{r}_d, t) = \eta'(\mathbf{r}_d) \hat{D}(t - \frac{r_d}{c}) \quad \text{avec} \quad \eta'(\mathbf{r}_d) = \frac{\omega_0^2}{4\pi\epsilon_0 c^2 r_d} \left(1 - \cos(\frac{\mathbf{r}_d}{r_d} \cdot \mathbf{e}_z) \right) \quad (\text{II.20})$$

Intensité de la lumière émise

Cherchons à présent à calculer l'intensité reçue par un détecteur situé au point \mathbf{r}_d . On considère dans un premier temps un atome unique et on suppose que le détecteur n'est pas exposé au laser incident éclairant l'atome. Le signal détecté est alors proportionnel à la valeur moyenne de l'opérateur intensité :

$$\langle \hat{I} \rangle = \epsilon_0 c \langle E^- E^+ \rangle \quad (\text{II.21})$$

E^+ et E^- sont respectivement les composantes de fréquences positive et négative de l'opérateur champ. E^+ est associé aux opérateurs annihilation du champ [Mandel 1995, ch. 10], et est donc proportionnel à l'opérateur $D^- = D_{ab} \mathcal{S}_{ba}$ qui décrit la perte d'un quanta d'énergie par l'atome. Ainsi :

$$\begin{aligned} \hat{E}^+(\mathbf{r}_d, t) &= \eta'(\mathbf{r}_d) \hat{D}^-(t - \frac{r}{c}) = \eta'(\mathbf{r}_d) D_{ab} \mathcal{S}_{ba} \\ \hat{E}^-(\mathbf{r}_d, t) &= \eta'(\mathbf{r}_d) \hat{D}^+(t - \frac{r}{c}) = \eta'(\mathbf{r}_d) D_{ab} \mathcal{S}_{ab} \end{aligned} \quad (\text{II.22})$$

L'intensité recherchée s'écrit donc :

$$\langle \hat{I}(\mathbf{r}_d) \rangle = \epsilon_0 c \langle \eta'(\mathbf{r}_d)^2 \hat{D}^+ \hat{D}^- \rangle \quad (\text{II.23})$$

D'où finalement :

$$\langle \hat{I}(\mathbf{r}_d) \rangle = \epsilon_0 c \eta'(\mathbf{r}_d)^2 D_{ab}^2 \langle S_{bb} \rangle \quad (\text{II.24})$$

C'est le premier résultat important de ce paragraphe : l'intensité totale émise par l'atome, ou plus exactement diffusée, est proportionnelle à la population de l'état excité. Dans l'approximation du champ lointain, le vecteur de Poynting est radial, et sa norme est donnée par l'intensité ci-dessus. La puissance totale W_{tot} diffusée par le dipôle s'écrit alors :

$$W_{tot} = \int_{4\pi} \epsilon_0 c r^2 \eta'(\mathbf{r}_d)^2 D_{ab}^2 \langle S_{bb} \rangle d\Omega \quad (\text{II.25})$$

Pour un atome à deux niveaux, la durée de vie de l'état excité est liée au dipôle de transition par la relation (voir [Cohen-Tannoudji 2001] ou Annexe A) :

$$\Gamma = \frac{8\pi^2}{3\epsilon_0 \hbar \lambda_0^3} D_{ab}^2 \quad (\text{II.26})$$

où λ_0 est la longueur d'onde de la transition ab . En utilisant ce résultat, il vient finalement :

$$\boxed{W_{tot} = \hbar \omega_0 \Gamma \langle S_{bb} \rangle} \quad (\text{II.27})$$

On retrouve ainsi l'expression de la puissance totale diffusée prédite par un raisonnement phénoménologique.

Revenons maintenant à l'expression II.23 de l'intensité au point \mathbf{r}_d . On peut la réécrire, en définissant les opérateurs $\delta \hat{D}^\pm = \hat{D}^\pm - \langle \hat{D}^\pm \rangle$:

$$\boxed{\langle \hat{I}(\mathbf{r}_d) \rangle = \epsilon_0 c \eta'(\mathbf{r}_d)^2 \left[\langle \hat{D}^+ \rangle \langle \hat{D}^- \rangle + \langle \delta \hat{D}^+ \delta \hat{D}^- \rangle \right]} \quad (\text{II.28})$$

Ce résultat nous montre que **l'intensité rayonnée par l'atome est la somme d'une contribution I_{coh} liée au dipôle atomique moyen et d'une autre I_{incoh} due aux fluctuations quantiques de ce dipôle**. Seul le premier terme a un équivalent classique.

Pour un atome à deux niveaux soumis à une onde plane monochromatique, on peut estimer l'importance relative de ces contributions en utilisant la solution II.11 des équations de Bloch optiques. En notant $I_0(\mathbf{r}_d) = \epsilon_0 c \eta'(\mathbf{r}_d)^2 D_{ab}^2$, on a ainsi :

$$\begin{aligned} \frac{\langle I_{coh}(\mathbf{r}_d) \rangle}{I_0(\mathbf{r}_d)} &= |\langle S_{ab} \rangle|^2 = \frac{1}{2} \frac{s}{(1+s)^2} \\ \frac{\langle I_{incoh}(\mathbf{r}_d) \rangle}{I_0(\mathbf{r}_d)} &= \langle S_{bb} \rangle - |\langle S_{ab} \rangle|^2 = \frac{1}{2} \frac{s^2}{(1+s)^2} \end{aligned} \quad (\text{II.29})$$

La figure II.2 montre l'importance relative de ces contributions en fonction de la saturation du laser incident. On constate que, si l'émission liée au dipôle moyen domine à faible saturation, elle devient minoritaire à mesure que croît l'intensité du faisceau incident, et que devient possible une redistribution d'énergie entre les photons incidents.

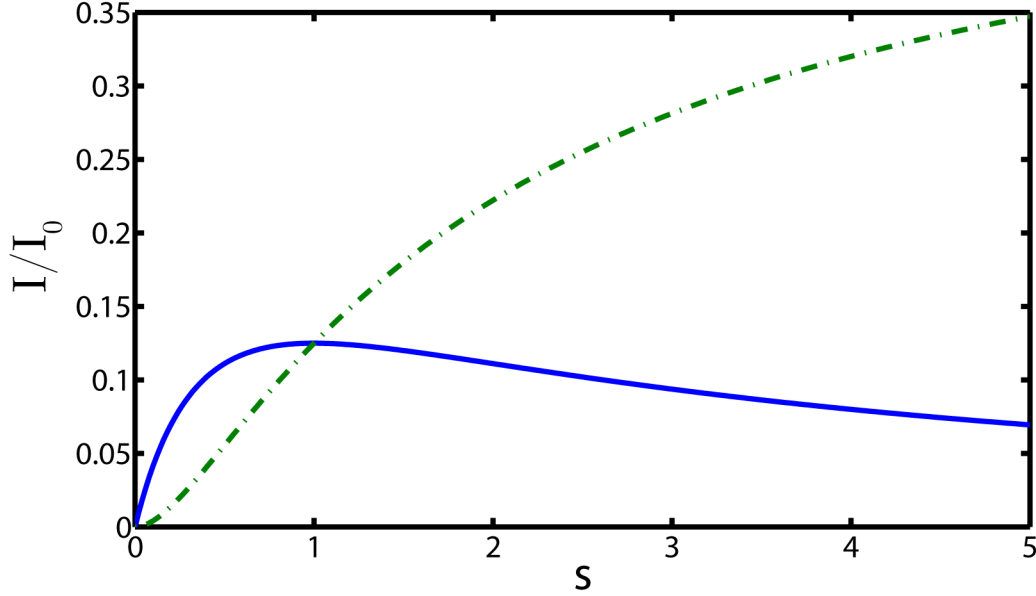


Figure II.2 – Intensités cohérente (ligne bleue continue) et incohérente (ligne verte pointillée) émises par un atome à deux niveaux éclairé par une onde monochromatique en fonction du paramètre de saturation s , calculées à partir de l'équation II.29.

Contributions cohérente et incohérente

Afin de mieux comprendre la nature de ces deux contributions, reprenons le calcul précédent en supposant cette fois-ci deux atomes présents dans le système. On fait l'hypothèse que ces atomes sont indépendants : la distance qui les sépare est grande devant leur longueur d'onde de De Broglie, on néglige l'impact du rayonnement d'un atome sur le comportement du second. On suppose que dans ces conditions la fonction d'onde du système global est factorisable en un produit de fonctions d'ondes atomiques¹. On note $\mathbf{r}_{jd} = \mathbf{r}_d - \mathbf{r}_j$, où \mathbf{r}_d est le vecteur position du détecteur, \mathbf{r}_j celui de l'atome j . L'intensité reçue par le détecteur s'écrit alors, en fonction des opérateurs moment dipolaire $D_{1,2}^{\pm}$ de chaque atome :

$$\langle \hat{I} \rangle = I_1 + I_2 + \epsilon_0 c \eta(\mathbf{r}_{1d}) \eta(\mathbf{r}_{2d}) \langle D_1^+ D_2^- + D_2^+ D_1^- \rangle \quad (\text{II.30})$$

1. La pertinence de cette hypothèse est en cours d'étude ; il se pourrait qu'elle soit parfois brisée, et que les caractéristiques de l'émission incohérente soient modifiées par des effets collaboratifs. On notera toutefois que la prise en compte de la seule émission cohérente suffit à décrire les expériences de spectroscopie pompe sonde présentées par la suite ; la transmission est alors déterminée par les interférences entre le champ rayonné et le champ incident.

où I_i est l'intensité détectée en présence de l'atome i seulement. Puisque la fonction d'onde est factorisable, on a encore :

$$\langle \hat{I} \rangle = I_1 + I_2 + 2\epsilon_0 c \eta(\mathbf{r}_{1d}) \eta(\mathbf{r}_{2d}) \text{Re} \left[\langle D_1^+ \rangle \langle D_2^- \rangle \right] \quad (\text{II.31})$$

Cette fois, on voit que seule la contribution des dipôles moyens subsiste dans les termes d'interférence. Pour cette raison, l'émission liée aux dipôles moyens est dite cohérente. Elle seule peut décrire l'interférence du champ rayonné avec le champ incident, et donc permettre de calculer l'indice du milieu ou la section efficace d'extinction de l'atome – ce que nous allons voir dans le paragraphe suivant. Enfin, elle seule peut contribuer aux effets non linéaires tels que la génération d'harmoniques, qui nécessitent une interférence constructive entre les contributions de différents atomes. A l'inverse, la contribution liée aux fluctuations quantiques du dipôle est dite incohérente ; dans le cadre des hypothèses effectuées, le diagramme d'émission incohérente d'un ensemble d'atomes reste identique à celui d'un atome unique.

II.2.2 Réponse cohérente

D'après ce que nous venons de voir, l'émission cohérente est totalement décrite par le champ moyen – au sens de la moyenne quantique – de polarisation dans le milieu. D'autre part, la polarisation moyenne $\mathcal{P}(\mathbf{r})$ d'un atome situé au point \mathbf{r} est déterminée par la connaissance de sa matrice densité, qui nous donne accès à la valeur moyenne de l'opérateur moment dipolaire. Ainsi :

$$\mathcal{P}(\mathbf{r}, t) = \text{Tr}[\rho(\mathbf{r}, t) \hat{\mathbf{D}}] \quad (\text{II.32})$$

Pour notre atome à deux niveaux, cette relation s'écrit plus simplement sous forme scalaire :

$$\mathcal{P}(\mathbf{r}, t) = 2D_{ab} \text{Re}[\langle \mathcal{S}_{ab} \rangle(\mathbf{r}, t)] \quad (\text{II.33})$$

Toutes les caractéristiques de la réponse cohérente peuvent être déterminées à partir de la connaissance de ce champ de polarisation par des raisonnements purement classiques.

Polarisabilité linéaire et non linéaire

Afin d'étudier les caractéristiques du champ de polarisation en régime permanent, il est commode de travailler dans le domaine de Fourier. On choisit par convention :

$$\begin{aligned} E(\mathbf{r}, \omega) &= \int_{-\infty}^{+\infty} E(\mathbf{r}, t) \exp[-i\omega t] dt \\ \mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{P}(\mathbf{r}, t) \exp[-i\omega t] dt \end{aligned} \quad (\text{II.34})$$

Ainsi, la polarisation s'écrit comme une fonction des amplitudes du champ aux différentes fréquences. En effectuant un développement en série de la polarisation, on obtient :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \left[\alpha^{(1)}(\omega) E(\mathbf{r}, \omega) + \int \alpha^{(2)}(\omega, \omega') E(\mathbf{r}, \omega') E(\mathbf{r}, \omega - \omega') d\omega' \right. \\ \left. + \iint \alpha^{(3)}(\omega, \omega', \omega'') E(\mathbf{r}, \omega') E(\mathbf{r}, \omega'') E(\mathbf{r}, \omega - \omega' - \omega'') d\omega' d\omega'' + \dots \right] \end{aligned} \quad (\text{II.35})$$

Supposons à présent notre gaz éclairé par une superposition de N ondes planes monochromatiques. Afin de respecter la convention introduite ci-dessus, on définit l'amplitude complexe $E_j(\mathbf{r})$ de l'onde j par :

$$E_j(\mathbf{r}, t) = E_j(\mathbf{r}) \exp[i\omega_j t] + c.c. \quad (\text{II.36})$$

Le développement en séries précédent devient [Boyd 2008] :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \left[\sum_j \alpha^{(1)}(\omega_j) E_j(\mathbf{r}) \delta(\omega - \omega_j) + \frac{1}{2} \sum_{j,l} \alpha^{(2)}(\omega_j, \omega_l) E_j(\mathbf{r}) E_l(\mathbf{r}) \delta(\omega - \omega_j - \omega_l) \right. \\ \left. + \sum_{j,l} \alpha^{(2)}(\omega_j, -\omega_l) E_j(\mathbf{r}) E_l^*(\mathbf{r}) \delta(\omega - \omega_j + \omega_l) + \dots \right] \end{aligned} \quad (\text{II.37})$$

Quelques remarques s'imposent à ce stade :

- La polarisabilité $\alpha^{(1)}$ décrit la réponse linéaire du système. Lorsque les champs incidents sont suffisamment faibles, elle caractérise à elle seule cette réponse. Le champ rayonné par l'atome ne possède alors de composantes non nulles qu'aux fréquences déjà présentes dans le champ incident.
- A l'inverse, les polarisabilités non linéaires $\alpha^{(2)}$, $\alpha^{(3)}$, ... décrivent la génération d'harmoniques liée à la réponse non linéaire du système. Dans des cas bien spécifiques, lorsqu'une condition d'accord de phase est vérifiée, ces termes non linéaires peuvent donner lieu à la génération d'une onde plane se propageant dans le système. Nous reviendrons sur ce phénomène au chapitre suivant, lorsque nous étudierons le phénomène de mélange à quatre ondes. Le plus souvent cependant, les contributions des différents atomes interfèrent "aléatoirement", et il en résulte une émission quasi isotrope. Il s'agit d'un processus de diffusion cohérent (à l'origine de structures spectrales "infiniment fines"), mais néanmoins inélastique (*ie* impliquant un changement de fréquence).

Sections efficaces et indice en régime linéaire

Supposons à présent les champs incidents suffisamment faibles pour pouvoir négliger les termes non linéaires apparaissant dans l'expression de la polarisation. On s'intéresse à

la réponse de l'atome à une onde plane P . La polarisabilité atomique à la fréquence ω_P s'écrit :

$$\alpha^{(1)}(\omega_P) = \frac{2D_{ab}\langle\mathcal{S}_{ab}\rangle(\mathbf{r}, \omega_P)}{\epsilon_0 E_p(\mathbf{r})} \quad (\text{II.38})$$

Le fait que ce quotient soit indépendant de la position est une caractéristique du régime linéaire. On définit également la polarisabilité réduite :

$$\tilde{\alpha}^{(1)}(\omega_P) = \frac{k_0^3}{6\pi} \alpha^{(1)}(\omega_P) = \frac{\Gamma}{\tilde{\Omega}_P(\mathbf{r})} \langle\mathcal{S}_{ab}\rangle(\mathbf{r}, \omega_P) \quad (\text{II.39})$$

où $k_0 = \omega_0/c$. Nous avons utilisé pour établir la dernière égalité les expressions II.26 et II.15 du taux de désexcitation de l'atome et de la pulsation de Rabi.

La puissance totale rayonnée par le dipôle moyen à la fréquence ω_P s'écrit :

$$W_{\text{sc}} = \frac{2\mu_0}{6\pi c} | \epsilon_0 \alpha^{(1)}(\omega_P) E_p |^2 \quad (\text{II.40})$$

Tandis que l'intensité incidente à cette même fréquence est donnée par :

$$I_{\omega_P} = \frac{\epsilon_0 c}{2} | E_P^2 | \quad (\text{II.41})$$

Le quotient de ces deux grandeurs nous donne finalement la **section efficace de diffusion élastique** de l'atome :

$$\sigma_{\text{sc}}(\omega_P) = \frac{k_0^4}{6\pi} | \alpha^{(1)} |^2 = \sigma_0 | \tilde{\alpha}^{(1)} |^2 \quad (\text{II.42})$$

où l'on a défini la quantité σ_0 homogène à une surface :

$$\sigma_0 = \frac{3\lambda_0^2}{2\pi} \quad (\text{II.43})$$

En utilisant la solution des équations de Bloch optiques II.11, on constate que la section efficace de diffusion d'un atome à deux niveaux éclairé à résonance dans des conditions de faible saturation vaut précisément σ_0 . Notons que σ_0 est entièrement déterminée par la connaissance de la longueur d'onde λ_0 de transition : les propriétés spécifiques de la transition telles que le dipôle atomique moyen de transition ou le taux de décroissance de l'état excité n'interviennent pas.

L'atome prélève de la puissance sur le champ incident car celui-ci interfère destructivement avec le champ diffusé vers l'avant. La **section efficace d'extinction** est donc

déterminée par le déphasage du champ diffusé vers l'avant. Pour un dipôle de polarisabilité $\alpha^{(1)}$, elle est donnée par [Lagendijk 1996] :

$$\sigma_{\text{ext}}(\omega_P) = k_0 \text{Im}[\alpha^{(1)}] = \sigma_0 \text{Im}[\tilde{\alpha}^{(1)}] \quad (\text{II.44})$$

C'est l'un des énoncés possible du théorème optique, aussi connu en mécanique quantique sous le nom de relation de Bohr-Peierls-Placzek [Messiah 1999]. Dans un gaz soumis à un faisceau unique - milieu passif non absorbant - la conservation de l'énergie garantit l'égalité des sections efficaces d'extinction et de diffusion.

Mentionnons enfin que la connaissance de la polarisabilité atomique nous permet également de déterminer l'indice du milieu. Dans un gaz homogène dilué de densité n_0 , non magnétique, l'indice complexe est la racine de la permittivité $\epsilon = 1 + n_0\alpha$. Sa partie imaginaire caractérise l'atténuation du champ dans le milieu, sa partie réelle n la vitesse de phase. Dans la limite des faibles densités, on obtient pour celle-ci :

$$n = 1 + \frac{n_0}{2} \text{Re}[\alpha] \quad (\text{II.45})$$

L'indice dépend de la densité du gaz : c'est une caractéristique du milieu homogénéisé. Les sections efficaces définies ci-dessus, au contraire, décrivent les échanges d'énergie entre le champ et un atome particulier. Elles sont parfaitement définies en régime non linéaire, et nous allons voir que les expressions ci-dessus peuvent être étendues sans difficulté à ce régime.

Extension au régime non linéaire

En régime non linéaire, la polarisation $\mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega_P)$ d'un atome à la fréquence d'un champ incident sonde P peut présenter un profil spatial arbitraire. Localement, cependant, la quantité :

$$\alpha(\mathbf{r}, \omega_P) = \frac{\mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega_P)}{E(\mathbf{r}, \omega_P)} = \frac{2D_{ab}\langle \mathcal{S}_{ab} \rangle(\mathbf{r}, \omega_P)}{\epsilon_0 E_p(\mathbf{r})} \quad (\text{II.46})$$

est toujours définie. Les puissances diffusée et prélevée par l'atome peuvent être calculées comme précédemment, tout comme les sections efficaces de diffusion et d'extinction, obtenues directement à partir des équations II.42 et II.44. Pour décrire les échanges d'énergie entre la composante du champ à la fréquence ω_P et le milieu, il est en général nécessaire de moyenner ces sections efficaces sur la position. Bien sûr, l'atome bénéficiant d'un apport d'énergie via les autres champs incidents "pompes", la section efficace d'extinction peut-être négative – l'atome amplifie alors le champ incident – ou encore la somme $\sigma_{\text{sc}} - \sigma_{\text{ext}}$ peut-être positive – l'atome émet à la fréquence sonde plus de puissance qu'il n'en prélève.

Lorsque la réponse du milieu vis à vis de l'onde P est fortement non linéaire, l'utilisation des sections efficaces ne présente que peu d'intérêt ; elles constituent simplement un intermédiaire de calcul utile pour réaliser un bilan de puissance. Cependant, dans la suite, nous considérerons souvent le cas d'atomes soumis à des pompes de forte intensité et à une sonde P plus faible, à une fréquence distincte de celle des pompes. **S'il n'existe pas de combinaison linéaire non triviale à coefficients entiers des fréquences des faisceaux incidents valant ω_P** , on peut réécrire la polarisation $\mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega_P)$ sous la forme :

$$\mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega_P) = \epsilon_0 \left[\alpha^{(1)}(\omega_P) + \sum_j \alpha^{(3)}(\omega_P, \omega_j, -\omega_j) E_j E_j^* + \dots \right] E_P(\mathbf{r}, \omega_P) \quad (\text{II.47})$$

Le terme entre crochets correspond à la polarisabilité $\alpha(\omega_P)$, donnée par l'équation II.46 ; notons qu'elle ne dépend plus de la position. Si l'on néglige les termes proportionnels à l'intensité de la sonde dans les sommes ci-dessus, la réponse du milieu au champ E_P en présence des champs pompes est linéaire, et ce même en présence de pompes arbitrairement intenses. Les puissances prélevée et diffusée à la fréquence ω_P sont alors proportionnelles à l'intensité du faisceau P incident, et les sections efficaces permettent de calculer directement la transmission ou encore le seuil du laser aléatoire.

II.2.3 Spectre de la lumière diffusée

Lorsqu'un milieu peut-être décrit en termes de polarisation, la connaissance de celle-ci suffit à déterminer le spectre de la lumière émise. L'équation II.37 montre ainsi que le spectre de l'émission cohérente des atomes est constitué de pics discrets, d'autant moins nombreux que les champs incidents sont faibles. La connaissance de la matrice densité de l'atome suffit à déterminer les amplitudes de ces pics.

Au contraire, nous ne savons pour l'instant rien du spectre de l'émission incohérente. D'après le théorème de Wiener-Khinchin, le spectre de la lumière diffusée par l'atome est donné par la transformée de Fourier de la fonction de corrélation du champ diffusé. Ainsi, l'intensité rayonnée s'écrit dans le domaine de Fourier :

$$I(\mathbf{r}_d, \omega) = \epsilon_0 c \int_{-\infty}^{+\infty} \langle E^-(\mathbf{r}_d, t + \tau) E^+(\mathbf{r}_d, t) \rangle e^{-i\omega\tau} d\tau \quad (\text{II.48})$$

Soit pour un atome à deux niveaux :

$$\begin{aligned} I(\mathbf{r}_d, \omega) &= I_0(\mathbf{r}_d) \int_{-\infty}^{+\infty} \langle S_{ab}(\tau) S_{ba}(0) \rangle e^{-i\omega\tau} d\tau \\ &= I_0(\mathbf{r}_d) \int_{-\infty}^{+\infty} \left[\langle S_{ab}(\tau) \rangle \langle S_{ba}(0) \rangle + \langle \delta S_{ab}(\tau) \delta S_{ba}(0) \rangle \right] e^{-i\omega\tau} d\tau \end{aligned} \quad (\text{II.49})$$

où l'on a utilisé l'invariance par translation dans le temps de la fonction de corrélation. Le premier terme du second membre correspond au spectre de l'émission cohérente. Il est proportionnel à la transformée de Fourier de la polarisation que nous avons étudiée précédemment. Le second terme est celui qui nous intéresse ici, puisqu'il décrit le spectre de l'émission incohérente. Cette fois, la connaissance de la matrice densité seule ne peut suffire à déterminer la fonction de corrélation $\langle \delta S_{ab}(\tau) \delta S_{ba}(0) \rangle$.

Le **théorème de régression quantique** établit que les fonctions de corrélation des observables d'un système quantique linéaire en interaction avec un réservoir régressent comme les valeurs moyennes [Lax 1968]. Son extension au cas d'un atome en interaction avec le vide n'est pas immédiate du fait de la non linéarité de la réponse de l'atome au champ (voir par exemple [Cohen-Tannoudji 2001, complément A_V]). Des éléments de démonstration de ce théorème sont donnés dans l'annexe A. Il s'écrit dans le cas qui nous intéresse ici, en utilisant les notations de l'équation II.8 :

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle \mathcal{S} S_j \rangle = \mathcal{B} \langle \mathcal{S} S_j \rangle + \lambda \langle S_j \rangle \quad (\text{II.50})$$

Ce qui, en utilisant les équations de Bloch optiques, donne encore :

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle \delta \mathcal{S} \delta S_j \rangle = \mathcal{B} \langle \delta \mathcal{S} \delta S_j \rangle \quad (\text{II.51})$$

En intégrant ces équations, on peut obtenir le spectre d'émission incohérente. Ainsi, pour un atome à deux niveaux soumis à une onde plane monochromatique P , celui-ci est proche d'une superposition de trois lorentziennes de largeur Γ , respectivement centrées en $\omega_0 - \Omega_P$, ω_0 , $\omega_0 + \Omega_P$: le triplet de Mollow [Mollow 1969]. La figure II.3 montre un exemple d'un tel spectre, obtenu en intégrant numériquement l'équation II.51.

II.3 Atomes multi-niveaux

Nous avons vu dans le paragraphe précédent comment calculer l'évolution de la matrice densité d'un atome à deux niveaux en présence d'un champ lumineux externe, puis comment déduire de cette matrice densité certaines propriétés optiques d'un gaz d'atomes à deux niveaux. Ces résultats présentent cependant un intérêt pratique limité, en particulier lorsqu'il s'agit de décrire les mécanismes de gain intervenant dans un laser, qui, en général, font intervenir des atomes multi-niveaux. L'objectif de ce paragraphe est donc d'étendre les résultats précédents à des systèmes multi-niveaux.

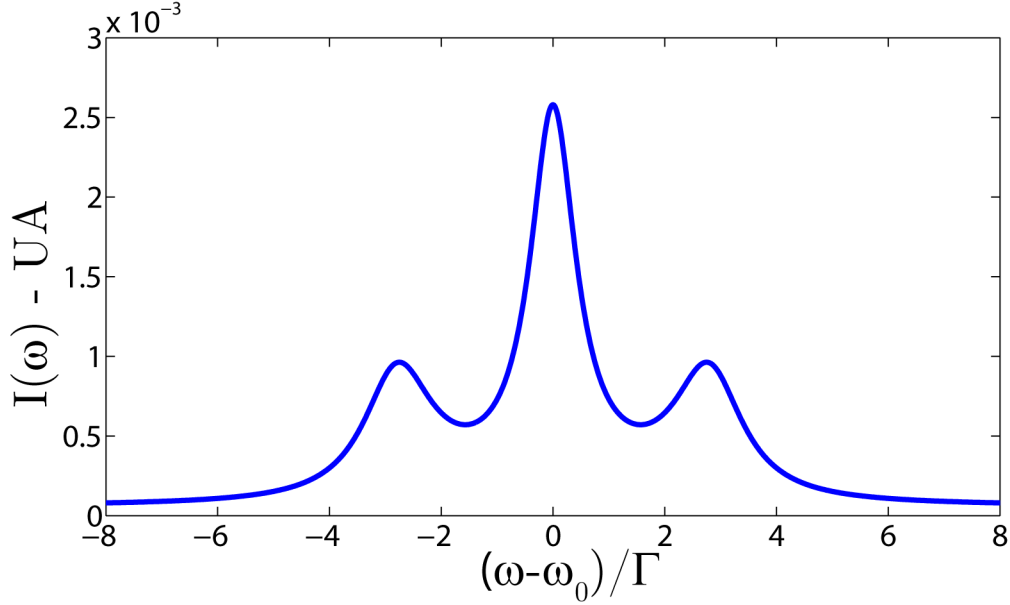


Figure II.3 – Spectre d’émission incohérent d’un atome à deux niveaux soumis à une onde monochromatique résonante de pulsation de Rabi $\Omega_P = 4\Gamma$. Ce spectre est obtenu numériquement en intégrant l’équation II.51 par une méthode de Runge-Kutta classique, puis en calculant la transformée de Fourier de la fonction du temps obtenue.

II.3.1 Equations de Bloch optiques

Forme générale des équations de Bloch optiques

On considère pour l’instant un atome multi-niveaux de structure quelconque éclairé par plusieurs ondes planes monochromatiques. Comme nous l’avons fait pour l’atome à deux niveaux, nous pouvons chercher à écrire l’hamiltonien du système atome + champ extérieur, et à en déduire une équation d’évolution de la matrice densité. Dans l’approximation dipolaire électrique, la forme de cet hamiltonien est toujours donnée par (équation II.2) :

$$H = H_A - \mathbf{D} \cdot \sum_{\text{Lasers } L} \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t) \quad (\text{II.52})$$

Les notations utilisées ici sont reportées sur la figure II.4. Comme précédemment, on définit l’opérateur de passage de l’état $|k\rangle$ à l’état $|l\rangle$ par :

$$\mathcal{S}_{kl} = |l\rangle\langle k| \quad (\text{II.53})$$

L'hamiltonien atomique H_A s'écrit :

$$H_A = \sum_{|k\rangle} \hbar\omega_k \mathcal{S}_{kk} \quad (\text{II.54})$$

où $\hbar\omega_k = E_k$ est l'énergie du niveau $|k\rangle$. Cherchons à présent à écrire l'opérateur moment dipolaire. Cette fois, différentes transitions peuvent être associées à des moments dipolaires d'orientations différentes, et il est donc nécessaire de prendre en compte les polarisations des champs incidents. Dans la base cartésienne $\{\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z\}$, soit \mathbf{e}_z la direction de quantification de l'atome. On introduit la base standard $\{\mathbf{e}_{-1}, \mathbf{e}_0, \mathbf{e}_{+1}\}$ telle que les composantes d'une onde plane incidente s'écrivent :

$$\begin{aligned} E_{-1} &= \frac{1}{\sqrt{2}}(E_x - iE_y) \\ E_0 &= E_z \\ E_{+1} &= \frac{1}{\sqrt{2}}(E_x + iE_y) \end{aligned} \quad (\text{II.55})$$

Lorsque seule l'une de ces composantes est non nulle, on dit que l'onde incidente est respectivement polarisée σ^- , π , σ^+ . Les états atomiques sont des états propres de l'opérateur F_z moment cinétique total selon \mathbf{e}_z . Dans ces conditions, l'opérateur moment dipolaire se met sous la forme :

$$\mathbf{D} = \sum_{\text{Etats } |k\rangle} \sum_{\text{Etats } |l\rangle} \mathbf{e}_{kl} D_{kl} \mathcal{S}_{kl} \quad (\text{II.56})$$

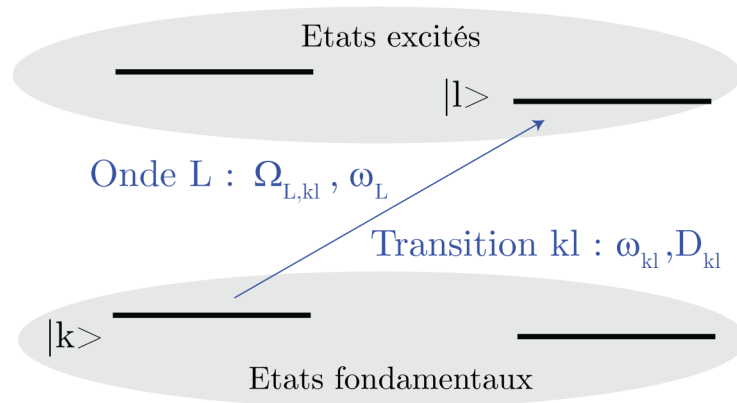


Figure II.4 – **Structure de l'atome multi-niveaux considéré.** On note $E_k = \hbar\omega_k$ l'énergie du niveau $|k\rangle$. La fréquence propre de la transition entre les niveaux $|k\rangle$ et $|l\rangle$ est notée ω_{kl} , le dipôle de transition associé \mathbf{D}_{kl} . L'atome est soumis à une superposition d'onde planes monochromatiques. L'onde plane L possède une fréquence ω_L ; sa pulsation de Rabi vis à vis de la transition kl est notée $\Omega_{L,kl}$. Si la transition est interdite, on aura simplement $D_{kl} = 0$ et $\Omega_{kl} = 0$.

où $\mathbf{e}_{kl} = \mathbf{e}_{-1}, \mathbf{e}_0$ ou \mathbf{e}_{+1} . D_{kl} est le moment dipolaire associé à la transition kl , donné à partir du moment dipolaire réduit par le théorème de Wigner-Eckart. Notons que $D_{kl} = D_{lk}$ et $\mathbf{e}_{kl} = \mathbf{e}_{lk}$.

Tout comme dans le cas de l'atome à deux niveaux, l'équation d'évolution de la matrice densité ρ s'écrit :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} \left[H_A - \mathbf{D} \cdot \sum_{\text{Lasers } L} \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t), \rho \right] + \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{\text{Relaxation}} \quad (\text{II.57})$$

La description ci-dessus nous permettent d'expliciter la partie hamiltonienne des équations de Bloch optiques ; les termes de relaxation, cependant, doivent être introduits sur une base phénoménologique – ce qui est le plus souvent difficile et conduit à des approximations mal maîtrisées – ou obtenus via une description quantique du système atome + champ total. Même ainsi, les équations obtenues peuvent être complexes et difficiles à exploiter en l'état.

Simplification : transition fondamentale d'un atome alcalin

Dans les cas qui nous intéresseront par la suite, les équations précédentes peuvent être rendues plus explicites et simplifiées. On considère donc un atome possédant deux groupes de niveaux d'énergie : des niveaux bas, et des niveaux hauts – typiquement, les sous niveaux des deux premiers états de la structure fine d'un alcalin. Une transition entre deux états d'un même groupe est interdite ($\Delta L = 0$), tandis que certaines transitions entre un niveau bas et un niveau haut sont possibles et sont associées à une fréquence optique. La figure II.4 résume cette situation.

On note ω_{kl} la fréquence propre de la transition kl et $\tilde{\Omega}_{L,kl}$ la pulsation de Rabi complexe du laser L pour la transition kl :

$$\begin{aligned} \tilde{\Omega}_{L,kl} &= -D_{kl} \mathbf{e}_{kl}^* \cdot \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, \omega_L) / \hbar \text{ pour } k < l \\ \tilde{\Omega}_{L,kl} &= -D_{kl} \mathbf{e}_{kl} \cdot \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, \omega_L) \text{ sinon} \end{aligned} \quad (\text{II.58})$$

$k < l$ signifie que l'énergie du niveau k est inférieure à celle du niveau l , et que $k \neq l$. En introduisant les opérateurs :

$$\tilde{S}_{kl} = \mathcal{S}_{kl} e^{-i\omega_{kl}t} \quad (\text{II.59})$$

on peut écrire les équations de Bloch optiques dans l'approximation de l'onde tournante

(voir l'annexe A pour une démonstration de ce résultat) :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \langle \tilde{S}_{kl} \rangle}{\partial t} = & \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j < l}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,jl}}{2} \langle \tilde{S}_{kj} \rangle e^{i(\omega_L - \omega_{jl})t} + \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j > l}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,jl}^*}{2} \langle \tilde{S}_{kj} \rangle e^{i(\omega_{lj} - \omega_L)t} \\
 & - \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j < k}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,kj}^*}{2} \langle \tilde{S}_{jl} \rangle e^{i(\omega_{jk} - \omega_L)t} - \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j > k}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,kj}}{2} \langle \tilde{S}_{jl} \rangle e^{i(\omega_L - \omega_{kj})t} \\
 & - \sum_{\substack{m < l \\ m < n}} R_{nmml} \langle \tilde{S}_{kn} \rangle e^{i(\omega_{mn} - \omega_{ml})t} - \sum_{\substack{m < k \\ m < n}} R_{nmmk} \langle \tilde{S}_{nl} \rangle e^{i(\omega_{mk} - \omega_{mn})t} \\
 & + 2 \sum_{\substack{l < m \\ k < n}} R_{mlkn} \langle \tilde{S}_{nm} \rangle e^{i(\omega_{lm} - \omega_{kn})t}
 \end{aligned} \tag{II.60}$$

Les quatre premiers termes proviennent de l'hamiltonien d'interaction entre l'atome et les champs externes. Les quatre suivants, au contraire, sont les termes de relaxation liés au couplage de l'atome au vide. Les coefficients R_{kijl} sont donnés par :

$$R_{kijl} = \frac{4\pi^2 D_{kj} D_{ml} \mathbf{e}_{kj} \cdot \mathbf{e}_{ml}}{3\epsilon_0 \hbar \lambda_0^3} \tag{II.61}$$

Lorsque $m = k$ et $j = l$, on peut faire apparaître dans l'expression ci-dessus le taux de décroissance de l'état l vers l'état k , et écrire pour $k < l$:

$$R_{klkl} = \frac{\Gamma_{kl}}{2} \tag{II.62}$$

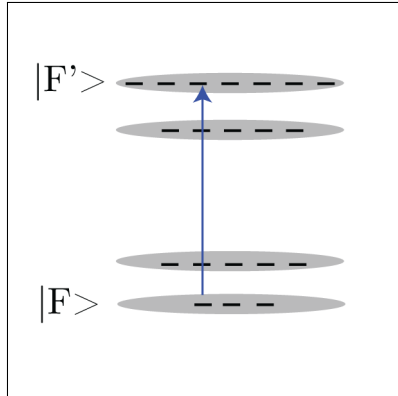
Dans la suite, on étudiera la réponse d'atomes pompés dans plusieurs configurations différentes, simplement en déclinant les équations ci-dessus dans ces configurations particulières. Telles quelles, cependant, les équations de Bloch optiques sont encore difficilement solubles. On fait donc souvent une approximation qui consiste à supprimer les termes oscillant plus rapidement qu'une fréquence choisie arbitrairement. Ceci mérite plusieurs remarques :

- Cette approximation est bien sûr beaucoup moins bonne que l'approximation de l'onde tournante ; nous verrons toutefois dans la suite qu'elle permet souvent d'obtenir des résultats en bon accord avec les observations expérimentales.
- Cette approximation permet notamment de considérer qu'un laser donné n'agit que sur une transition atomique. Elle conduit également, lorsque les écarts d'énergie entre les niveaux atomiques sont suffisamment grands, à négliger la plupart des termes de relaxation, pour ne garder que les termes non oscillants, similaires à ceux utilisés pour un système à deux niveaux.
- Toutefois, si le désaccord des lasers devient du même ordre de grandeur que l'écart entre les niveaux, la forme phénoménologique des termes de relaxation n'est plus

valable. Nous verrons au chapitre suivant une situation (absorption induite électromagnétiquement) où la non prise en compte des termes de relaxation oscillants conduit à des résultats aberrants.

Cas de niveaux dégénérés

Les équations de Bloch optiques établies ci-dessus permettent de traiter le cas de niveaux dégénérés. Cependant, la prise en compte d'un grand nombre de niveaux rend la résolution de ces équations difficile, d'autant plus que, en présence de niveaux dégénérés, il est indispensable de tenir compte d'un grand nombre de termes de relaxation d'ordinaire négligés. Or un alcalin tel que le rubidium possède des niveaux hyperfins de moment cinétique total F non nul et donc chacun constitué de plusieurs sous niveaux Zeeman qui, en l'absence de champ magnétique extérieur sont dégénérés.



Une alternative possible pour modéliser un tel atome consiste à ne considérer que des **transitions FF' entre des niveaux hyperfins effectifs** regroupant tous leurs sous niveaux Zeeman. Dans ce cas, le dipôle moyen de transition est donné par l'élément de matrice réduit

$$D_{FF'} = \langle F || \mathbf{D} || F' \rangle. \quad (\text{II.63})$$

Les populations des sous niveaux sont supposées équiréparties, et les termes de relaxation sont estimés par une moyenne sur toutes les transitions possibles entre

sous niveaux. On obtient (voir [Budker 2004, p. 136-138] pour une démonstration de ce résultat pour $m = k$ et $j = l$) :

$$R_{kjml} = \sqrt{\frac{2K+1}{2J+1}} \sqrt{\frac{2M+1}{2L+1}} \frac{4\pi^2 D_{kj} D_{ml}}{3\epsilon_0 \hbar \lambda_0^3} \quad (\text{II.64})$$

où J, L, \dots dénotent respectivement le moment cinétique total des états j, l, \dots , et $2J+1, 2K+1, \dots$ correspondent au nombre de sous-niveaux qu'ils possèdent. C'est avant tout le fait de modifier cette relation entre les termes de relaxation et les dipôles moyens de transition qui est susceptible de modifier qualitativement les résultats des équations de Bloch optiques, et de rendre ainsi leur résultat spécifique au cas de niveaux dégénérés.

Notons que les termes de relaxation des populations d'un niveau excité $|F'\rangle$ vers un niveau fondamental $|F\rangle$ deviennent :

$$\Gamma_{FF'} = \frac{8\pi^2}{3\epsilon_0 \hbar \lambda_0^3} \frac{2F+1}{2F'+1} D_{FF'}^2 \quad (\text{II.65})$$

Dans le cas particulier des transitions entre les niveaux hyperfins d'un alcalin, les dipôles moyens de transition $D_{FF'}$, éléments de matrice du produit de l'opérateur position r et de la charge e de l'électron sont donnés par :

$$\begin{aligned} D_{FF'} &= \langle F | er | F' \rangle \\ &= (-1)^{F'+J+I+1} \langle J | er | J' \rangle \sqrt{(2F'+1)(2J+1)} \begin{bmatrix} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (\text{II.66})$$

où I est le spin du noyau, $|J\rangle$ le niveau fin fondamental et $|J'\rangle$ le niveau fin excité, J et J' les moments cinétiques totaux associés à ces niveaux. Les crochets désignent un coefficient de Wigner 6-j. Cette relation peut être réécrite plus simplement :

$$D_{FF'} = (-1)^{F'+J+I+1} \langle J | er | J' \rangle \sqrt{\underline{S}_{FF'}} \quad (\text{II.67})$$

Les dipôles moyens de transition $\langle J | er | J' \rangle$ et les facteurs de transition $\underline{S}_{FF'}$ sont tabulés et disponibles dans la littérature [Steck 2008]. Remarquons finalement que la relation II.66 implique l'égalité des taux de décroissance globaux Γ des populations de tous les niveaux hyperfins excités F' :

$$\Gamma = \sum_F \Gamma_{FF'} = \frac{8\pi^2}{3\epsilon_0 \hbar \lambda_0^3} \frac{2J+1}{2J'+1} \langle J | er | J' \rangle^2 \quad (\text{II.68})$$

Moyennant les hypothèses effectuées, les équations de Bloch optiques II.60 écrites pour un atome composé de niveaux hyperfins effectifs non dégénérés, avec des termes de relaxations modifiés, permettent de décrire la réponse d'un système plus complexe comportant des niveaux dégénérés. Notons cependant que les approximations effectuées sont mal contrôlées. Notamment :

- Dans ce type de modèle, il devient bien sûr impossible de prendre en compte la polarisation de la lumière.
- En particulier, les estimations de la puissance émise par l'atome sont rendues difficiles par la méconnaissance de la répartition de la puissance émise dans les différentes polarisations.
- Le modèle perd toute pertinence s'il existe un état noir du système, c'est à dire si les populations tendent à s'accumuler dans l'un des sous-niveaux Zeeman par des effets liés à la polarisation de la lumière incidente. Cependant, ces effets de pompage optique peuvent être rendus inopérants lorsque les bruits expérimentaux tendent à remélanger les populations des sous-niveaux Zeeman (champ magnétique résiduel fluctuant, pompage dû à la lumière diffusée dont la polarisation évolue au cours du temps du fait du mouvement des atomes...)

Malgré ces limites, résumées sur la figure II.5, la réponse cohérente de l'atome est souvent bien décrite par ces modèles effectifs. Nous le mettrons en évidence au chapitre suivant.

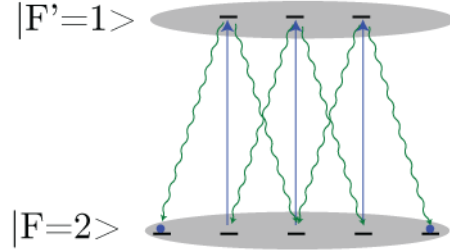


Figure II.5 – **Limites du modèle de niveaux effectifs dégénérés.** Dans la configuration ci dessus, les populations atomiques tendent à s'accumuler dans les sous niveaux Zeeman $m_F = \pm 2$ du niveau fondamental $F = 2$, qui sont des états noirs du système. D'autre part, la polarisabilité calculée rend compte de l'émission cohérente liée aux transitions excitées par le faisceau incident (en bleu), mais pas de l'émission incohérente émise via les transitions de polarisation transverse (en vert), qui peut pourtant être spectralement fine (voir figure II.6 pour un spectre d'émission Raman dans des conditions similaires).

II.3.2 Propriétés de la lumière émise

Réponse cohérente

Une fois connues les matrices densité d'atomes multi-niveaux, les propriétés optiques du gaz qu'ils constituent peuvent être obtenues de façon analogue à ce qui a été fait pour des atomes à deux niveaux. Ainsi, la polarisation moyenne $\mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega)$ d'un atome est donnée par :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega) &= \text{Tr}[\rho(\mathbf{r}, \omega) \hat{\mathbf{D}}] \\ &= \sum_{\text{Etats } |k\rangle} \sum_{\text{Etats } |l\rangle} \mathbf{e}_{kl} D_{kl} \langle \mathcal{S}_{kl} \rangle(\mathbf{r}, \omega) \end{aligned} \quad (\text{II.69})$$

Tout comme dans le cas d'atomes à deux niveaux, nous pouvons déduire de cette expression le spectre de l'émission cohérente, la polarisabilité d'un atome éclairé par une sonde faible, ses sections efficaces de diffusion et d'extinction ou encore l'indice du milieu.

Bien sûr, l'expression ci-dessus n'est valable que lorsqu'il est possible d'associer une polarisation à la transition kl . Elle ne s'applique donc pas dans le cas du modèle simplifié de transitions effectives entre niveaux dégénérés présenté au paragraphe précédent. Dans ce dernier cas, la réponse du milieu peut être modélisée par une section efficace d'extinction pondérée d'un facteur $1/3$: du fait des symétries des coefficients de Clebsch-Gordon, la puissance rayonnée par l'atome se répartit de façon égale selon les trois canaux de polarisation ; et seule une composante du champ diffusé est susceptible d'interférer avec

le champ incident pour causer son extinction.

A titre d'exemple, calculons la section efficace d'extinction d'un atome alcalin dans des conditions d'éclairement simples, qui nous sera utile par la suite. Supposons que chaque laser éclairant l'atome puisse exciter au plus une transition hyperfine et que l'on puisse négliger, dans les équations de Bloch optiques II.60, tous les termes de relaxation oscillants - cela implique notamment que les écarts d'énergie entre les niveaux excités soient importants devant les désaccords des lasers. On appellera cela l'**approximation des transitions indépendantes**. Ici, on considère une transition kl excitée par un unique laser L , de fréquence ω_L , et on suppose qu'aucune autre transition impliquant les niveaux k et l n'est excitée par un faisceau externe. Moyennant ces hypothèses, les équations de Bloch optiques II.60 donnent :

$$\langle \mathcal{S} \rangle(\omega_L) = \frac{\Omega_{L,kl}}{2} \frac{\langle \mathcal{S}_{kk} \rangle - \langle \mathcal{S}_{ll} \rangle}{(\omega_L - \omega_{kl}) - i\Gamma/2} \quad (\text{II.70})$$

où l'on a utilisé le résultat lié aux propriétés des coefficients de Wigner : $\sum_{m<l} \Gamma_{ml} = \Gamma$. L'équation II.46 donne pour la polarisabilité :

$$\alpha(\omega_L) = \frac{1}{3} \frac{D_{kl}^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{4(\omega_L - \omega_{kl})/\Gamma^2 + 2i/\Gamma}{1 + 4(\omega_L - \omega_{kl})^2/\Gamma^2} (\langle \mathcal{S}_{kk} \rangle - \langle \mathcal{S}_{ll} \rangle) \quad (\text{II.71})$$

où l'on a donc introduit un facteur $1/3$ supplémentaire pour prendre en compte les effets de polarisation. On déduit finalement, d'après l'équation II.44, la section efficace d'extinction à la fréquence ω_L :

$$\boxed{\sigma_{\text{ext}}(\omega_L) = \frac{\mathcal{C} \sigma_0}{1 + 4(\omega_L - \omega_{kl})^2/\Gamma^2} (\langle \mathcal{S}_{kk} \rangle - \langle \mathcal{S}_{ll} \rangle)} \quad (\text{II.72})$$

Le facteur \mathcal{C} permet de prendre en compte la structure atomique multi-niveaux :

$$\mathcal{C} = \frac{1}{3} \frac{2J' + 1}{2J + 1} \underline{S}_{FF'} \quad (\text{II.73})$$

Notons qu'il se simplifie dans le cas d'une transition fermée :

$$\mathcal{C} = \frac{1}{3} \frac{2F' + 1}{2F + 1} \quad (\text{II.74})$$

Dans le cas simple considéré, où aucune transition multiphotonique n'implique les photons de fréquence ω_L , la section efficace d'extinction à cette fréquence est déterminée par la connaissance de la longueur d'onde de transition, des facteurs de transition, et des populations atomiques seulement.

Intensité totale émise

Dans toute la suite de ce chapitre, on considèrera uniquement des transitions entre niveaux non dégénérés. Même dans ce cas, la détermination de la puissance totale émise par l'atome demande davantage de précautions que celle de la réponse cohérente. La composante de fréquence positive de l'opérateur moment dipolaire s'écrit dans l'approximation de l'onde tournante :

$$\mathbf{D}^+ = \sum_{k < l} \mathbf{e}_{kl} D_{kl} \mathcal{S}_{kl} \quad (\text{II.75})$$

L'intensité rayonnée par l'atome au point \mathbf{r}_d , qui est aussi, en champ lointain, la norme du vecteur de Poynting radial, est donnée par :

$$\begin{aligned} I(\mathbf{r}_d, t) &= \epsilon_0 c \eta'(r_d) \langle \mathbf{D}^+ \cdot \mathbf{D}^- \rangle(t) \\ &= \sum_{\substack{k < l \\ k < m}} \mathbf{e}_{kl} \mathbf{e}_{km} D_{kl} D_{km} e^{i\omega_{ml}t} \langle \tilde{S}_{ml} \rangle(t) \end{aligned} \quad (\text{II.76})$$

On constate que, outre les populations des états excités, l'expression de l'intensité rayonnée fait cette fois intervenir les cohérences entre les états excités. Ces termes décrivent des interférences entre les rayonnements émis par désexcitation de l'atome sur les différentes transitions.

On se place à présent dans l'approximation des transitions indépendantes. Pour $m \neq l$, les valeurs moyennes $\langle \tilde{S}_{ml} \rangle$ évoluent à des fréquences lentes devant ω_{ml} . Alors les termes d'interférences sont des termes oscillants qui se moyennent à 0, et :

$$W_{tot} = \sum_{\text{Etats } k < l} \hbar \omega_{kl} \Gamma_{kl} \langle \mathcal{S}_{ll} \rangle \quad (\text{II.77})$$

La puissance totale W_{tot} diffusée par l'atome dépend donc uniquement des populations dans les états excités.

Spectre de la contribution incohérente

Comme dans le cas de l'atome à deux niveaux, la fonction de corrélation à deux temps des opérateurs moment dipolaire est obtenue par des équations similaires aux équations de Bloch optiques². D'après le théorème de Wiener-Khinchin, le spectre de l'émission atomique est donné par la transformée de Fourier de la fonction de corrélation des opérateurs atomiques :

$$I(\mathbf{r}_d, \omega) = \epsilon_0 c \eta'(\mathbf{r}_d) \int d\tau \sum_{\substack{k < l \\ m < n}} D_{mn} D_{kl} \langle \tilde{S}_{mn}(t + \tau) \tilde{S}_{lk}(t) \rangle e^{i(\omega_{mn} - \omega_{kl})t} e^{i(\omega_{mn} - \omega)\tau} \quad (\text{II.78})$$

2. On se reportera à l'annexe A pour un énoncé plus détaillé du théorème de régression quantique.

où la barre horizontale désigne une valeur moyenne temporelle. Dans un atome multi-niveaux, un changement d'énergie d'un photon diffusé peut se faire via un changement d'état interne de l'atome. En conséquence, l'émission incohérente peut représenter une fraction significative de la puissance rayonnée, y compris dans la limite des très faibles flux incidents – puisqu'il n'est plus nécessaire de pouvoir faire des échanges d'énergie entre les photons. Dans ce cas cependant, la largeur du spectre d'émission incohérente tend vers une limite nulle. La figure II.6 illustre ce phénomène.

Dans l'approximation des transitions indépendantes, nous pouvons sans connaître les détails des fonctions de corrélation des opérateurs atomiques tirer de l'équation II.78 des informations sur la structure du spectre de la lumière émise par l'atome. En effet, pour $\{m, n\} \neq \{k, l\}$, la valeur moyenne $\langle \tilde{S}_{mn}(t+\tau) \tilde{S}_{lk}(t) \rangle$ évolue à des fréquences lentes devant $\omega_{mn} - \omega_{kl}$, de sorte que la moyenne temporelle des “termes d'interférence” entre les différentes transitions s'annule. Finalement :

$$I(\mathbf{r}_d, \omega) = \epsilon_0 c \eta'(\mathbf{r}_d) \int d\tau \sum_{k < l} D_{kl}^2 \overline{\langle \tilde{S}_{kl}(t+\tau) \tilde{S}_{lk}(t) \rangle e^{i(\omega_{kl}-\omega)\tau}} \quad (\text{II.79})$$

Soit ab une transition optique de l'atome. L'intensité totale rayonnée dans une bande spectrale de largeur Δ centrée sur la fréquence de transition ω_{ab} s'écrit :

$$\begin{aligned} I_{\omega_{ab}}(\mathbf{r}_d) &= \int_{\omega_{ab}-\Delta/2}^{\omega_{ab}+\Delta/2} I(\mathbf{r}_d, \omega) d\omega \\ &= \epsilon_0 c \eta'(\mathbf{r}_d) \int \sum_{k < l} D_{kl}^2 \overline{\langle \tilde{S}_{kl}(t+\tau) \tilde{S}_{lk}(t) \rangle \left[\int_{\omega_{ab}-\Delta/2}^{\omega_{ab}+\Delta/2} e^{i(\omega_{kl}-\omega)\tau} d\omega \right]} d\tau \end{aligned} \quad (\text{II.80})$$

Avec $\Gamma_{ab} \ll \Delta \ll \omega_{kl}$ pour tous niveaux k, l tels que $k \neq l$ (un tel Δ existe nécessairement dans l'approximation des transitions indépendantes), la fonction entre crochets est très proche d'une distribution de Dirac si $\omega_{kl} \in [\omega_{ab} - \Delta/2; \omega_{ab} + \Delta/2]$, de 0 sinon, de sorte que :

$$\begin{aligned} I_{\omega_{ab}}(\mathbf{r}_d) &= \epsilon_0 c \eta'(\mathbf{r}_d) D_{ab}^2 \int \langle \tilde{S}_{ab}(t+\tau) \tilde{S}_{ba}(t) \rangle \delta(\tau) d\tau \\ &= \epsilon_0 c \eta'(\mathbf{r}_d) D_{ab}^2 \langle \tilde{S}_{bb} \rangle \end{aligned} \quad (\text{II.81})$$

Comme dans le cas de l'atome à deux niveaux, on peut intégrer ce vecteur de Poynting sur une sphère pour en déduire la puissance totale W_{ab} rayonnée dans la bande de fréquence considérée :

$$W_{ab} = \hbar \omega_{ab} \Gamma_{ab} \langle \tilde{S}_{bb} \rangle \quad (\text{II.82})$$

La puissance émise dans une bande spectrale de largeur comparable à Γ_{ab} autour la fréquence d'une transition ab est donc proportionnelle à la population dans l'état excité $|b\rangle$. On peut ainsi déterminer une section efficace de diffusion

“quasi-élastique” $\sigma_{\text{sc},\Gamma}$ d'un faisceau P excitant la transition ab :

$$\sigma_{\text{sc},\Gamma} = \sigma_0 \frac{\Gamma_{ab}}{\Omega} (\langle \tilde{S}_{bb}(\Omega_P = \Omega) - \tilde{S}_{bb}(\Omega_P = 0) \rangle) \quad (\text{II.83})$$

Elle nous sera utile ultérieurement pour réaliser un bilan de puissance dans une bande spectrale de largeur finie donnée.

II.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons tenté de mettre en place les outils permettant de réaliser un bilan des échanges de puissance entre la lumière et un gaz d'atomes immobiles. Nous avons vu que les **équations de Bloch optiques permettent d'évaluer l'évolution de la matrice densité** d'atomes multi-niveaux, éventuellement pompés par plusieurs lasers externes. À partir des populations et des cohérences obtenues, nous avons appris à calculer la puissance totale diffusée par l'atome, ou encore la puissance prélevée sur un faisceau incident.

Globalement, cependant, l'atome n'échange d'énergie qu'avec le champ – il n'existe pas dans les systèmes que nous considérerons par la suite de processus de désexcitation non radiative. Réaliser un bilan de puissance global présente donc peu d'intérêt. Ce qui nous intéresse au contraire est de pouvoir réaliser **un bilan des échanges entre l'atome et le champ dans une bande de fréquence spécifique**. De cette façon, nous pouvons espérer décrire la capacité de l'atome à générer de la puissance ou à amplifier la lumière dans une bande de fréquence particulière.

Nous avons introduit tous les outils pour effectuer ce bilan de puissance dans une bande de fréquence infiniment étroite centrée sur la fréquence ω_P d'un laser incident. L'émission incohérente de l'atome est décrite par une fonction continue de la fréquence et ne contribue donc pas au bilan de puissance dans un intervalle arbitrairement étroit. **La polarisabilité (réduite) de l'atome :**

$$\tilde{\alpha}(\mathbf{r}, \omega_P) = \frac{k_0^3}{6\pi} \frac{\text{Tr}(\rho(\mathbf{r}, \omega_P) \mathbf{D})}{\epsilon_0 E_P(\omega_P)}$$

caractérise alors complètement l'émission de l'atome à la fréquence ω_P . Elle détermine notamment les sections efficaces d'extinction et de diffusion :

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{ext}}(\mathbf{r}, \omega_P) &= \sigma_0 \text{Im}[\tilde{\alpha}] \\ \sigma_{\text{sc}}(\mathbf{r}, \omega_P) &= \sigma_0 |\tilde{\alpha}|^2 \end{aligned}$$

Lorsque la section efficace d'extinction est négative, l'atome amplifie le champ incident à la fréquence ω_P . Plus généralement, lorsque la différence de ces sections efficaces $\sigma_{\text{sc}} - \sigma_{\text{ext}}$

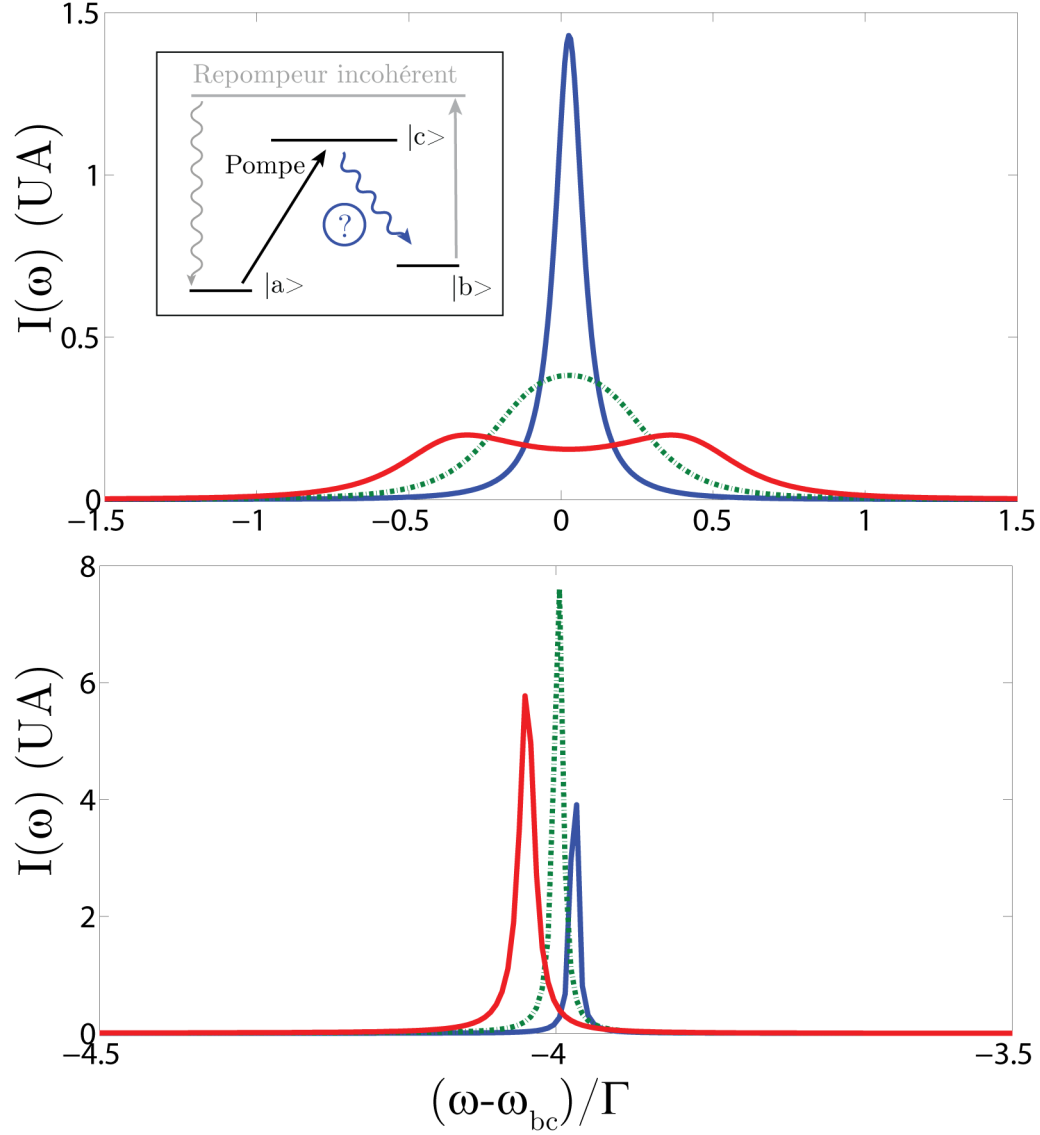


Figure II.6 – Spectre de la lumière diffusée inélastiquement dans un système en configuration Λ , calculé à partir de l'équation II.78. En haut, en insert : Configuration considérée. Un niveau excité $|c\rangle$ de taux de décroissance Γ peut se désexciter vers les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$. Une pompe excite la transition ac . Un repompeur (pulsation de Rabi 1.3Γ , désaccord -5Γ) permet de maintenir l'état $|a\rangle$ partiellement peuplé. On représente le spectre de la lumière émise au voisinage de la fréquence ω_{bc} . **En haut** : pour une pompe à résonance, de pulsation de Rabi Γ (courbe continue bleue), 2Γ (pointillés verts) et 4Γ (courbe continue rouge). Dans ce dernier cas, la raie d'émission se dédouble du fait de la séparation du niveau $|c\rangle$ en deux niveaux habillés (doublet Autler-Townes, voir [Cohen-Tannoudji 2001, P. 425]). **En bas** : pour une pompe désaccordée de -4Γ par rapport à la transition ac . La largeur du spectre incohérent est alors faible devant Γ . L'intensité totale émise dans la bande spectrale considérée croît avec la puissance pompe, mais la largeur du spectre également ; pour les fortes puissances pompes, cet élargissement prend le pas sur la croissance de l'intensité émise, de sorte que l'amplitude du pic d'émission diminue.

est positive, l'atome génère globalement de la puissance à la fréquence ω_p . C'est dans ce type de conditions qu'un laser aléatoire est possible, ce à quoi nous allons nous intéresser dans la partie qui suit.

Dans bien des cas cependant – notamment pour l'étude de la diffusion multiple de la lumière dans un gaz en présence d'une faible agitation thermique et donc d'effet Doppler – considérer une bande de fréquence infiniment étroite n'a que peu d'intérêt. Ceci est d'autant plus vrai que l'émission atomique incohérente, négligée précédemment, peut se concentrer dans un intervalle spectral étroit, de largeur comparable à celle des lasers utilisés dans les expériences d'atomes froids. **Nous avons introduit certains outils, tels que le théorème de régression quantique, nous permettant de déterminer la puissance émise par un atome dans une bande de fréquence arbitraire.** Nous l'avons utilisé pour lier la puissance émise “autour d'une transition donnée” aux populations dans les états excités. Cependant, **décrire l'interaction d'un atome avec un rayonnement de largeur spectrale comparable à la largeur des niveaux excités constitue un point extrêmement délicat.** Nous y reviendrons dans l'avant dernier chapitre de cette thèse.

Deuxième Partie

Vers un laser aléatoire à atomes froids

Introduction

Un laser classique est constitué d'un milieu à gain et d'une cavité, qui assure un processus de rétroaction forçant la lumière à de multiples allers-retours dans le système. La cavité définit les modes du champ électromagnétique dans le milieu amplificateur et détermine les propriétés de cohérence spatiales et temporelles du laser - les modes auxquels sont associées les pertes les plus faibles sont préférentiellement amplifiés.

La cavité peut être remplacée par un processus de rétroaction induit par la présence de diffuseurs dans le milieu à gain. Nous avons vu que, dans ces conditions, l'intensité diffuse peut s'emballer lorsque le milieu dépasse une certaine taille critique. C'est le phénomène de bombe photonique, prédit par Letokhov à partir de l'équation de la diffusion en 1968 [Letokhov 1968], et que nous avons décrit au premier chapitre de cette thèse. Un laser aléatoire correspond au régime atteint dans le système après saturation du gain.

Les premiers lasers aléatoires sont réalisés à la fin des années 80 [Markushev 1986, Guedard 1993] à l'aide de poudres de semi-conducteurs soumises à un pompage optique pulsé. Les auteurs mettent en évidence l'existence d'un niveau de gain seuil, au delà duquel, dans un échantillon donné, le spectre d'émission s'affine, tandis que la dynamique d'émission s'accélère. Le niveau de gain est contrôlé expérimentalement via la puissance pompe, à laquelle il est supposé proportionnel. Peu après, un nouveau système est mis au point pour étudier l'effet laser aléatoire : des microbilles diffusantes sont placées en suspension dans un milieu amplificateur liquide à base de colorants organiques [Lawandy 1994]. Un rétrécissement du spectre de la lumière émise avec la puissance pompe est mis en évidence. Son origine est soumise à débat : elle est d'abord attribuée à un effet de laser aléatoire, avant que le rôle de la rétroaction diffuse dans ce processus ne soit remis en question [Wiersma 1995, Lawandy 1995] ; toutefois, l'existence d'un seuil laser dans des échantillons modifiés et plus diffusants est établie ultérieurement [Martorell 1996].

Au delà de l'anecdote, cette controverse illustre la difficulté de définir une signature universelle du laser aléatoire. Beaucoup de ses propriétés d'émission, comme le rétrécissement du spectre par rapport à celui d'émetteurs isolés, ou l'apparition de multiples pics spectraux fins, sont communes avec l'émission spontanée amplifiée³. Parmi les comportements considérés jusqu'à présent comme une signature de l'obtention d'un laser aléatoire dans un milieu diffusant en présence de gain, citons :

- L'existence pour un échantillon donné d'un seuil, au delà duquel la puissance totale émise dans une bande de fréquence donnée croît fortement avec l'efficacité du gain – contrôlée par le dispositif de pompage de l'échantillon [Cao 2000].

3. Notons qu'il en est de même pour les lasers classiques. Des systèmes sans rétroaction donnant lieu à de l'émission spontanée amplifiée directionnelle sont de fait qualifiés de laser, notamment dans le domaine des émetteurs UV et X.

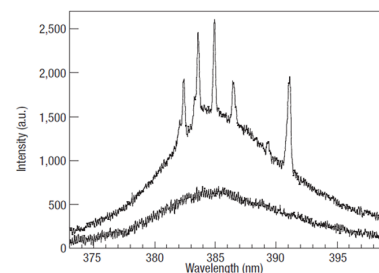
- L'existence pour un échantillon donné d'un seuil dans l'efficacité du gain, au delà duquel seulement la largeur du spectre d'émission décroît [Gouedard 1993].
- L'apparition de pics spectraux étroits dans le spectre d'émission, reproductibles d'une expérience à l'autre à condition que la configuration de l'échantillon reste parfaitement fixée [Cao 2000] – par opposition aux pics fins liés à l'émission spontanée amplifiée, dont la position évolue au cours du temps.
- Une statistique de photons poissonnienne [Cao 2001] – autrement dit, l'arrivée des photons émis par le système sur un détecteur extérieur est répartie plus uniformément dans le temps que pour une source thermique.

Depuis 1996, de telles signatures du laser aléatoire ont été mises en évidence dans de nombreux systèmes en régime pulsé. L'obtention d'un laser aléatoire continu est plus récente, et le phénomène a été mis en évidence dans quelques systèmes seulement [Williams 2001, Redmond 2004].

Dans un premier temps, les lasers aléatoires sont essentiellement étudiés pour leurs potentielles applications en tant que sources lumineuses. On y voit la possibilité de produire des sources monochromatiques isotropes bas coût – pour des dispositifs d'affichage par exemple – ou des émetteurs d'impulsions ultracourtes. Ces applications potentielles nécessitent probablement de réaliser des lasers aléatoires aux propriétés bien contrôlées et reproductibles, et de préférence alimentés via un pompage électrique – un challenge toujours d'actualité [Wiersma 2008]. L'intérêt pour le domaine s'accroît considérablement au milieu des années 90, lorsque l'on réalise que l'observation du rayonnement émis par un laser aléatoire permet de caractériser le milieu diffusant lui-même et son impact sur la structure du champ. Notamment, l'introduction de gain doit permettre de compenser l'absorption et d'amplifier des modes du champ peu ou pas couplés à l'environnement – autrement dit, des modes sans fuites vers l'extérieur – rapidement atténués dans un milieu passif absorbant. En bref, ce peut être un outil déterminant pour observer la localisation d'Anderson de la lumière – ou du moins l'existence de modes localisés – dans un milieu désordonné [Wiersma 1996].

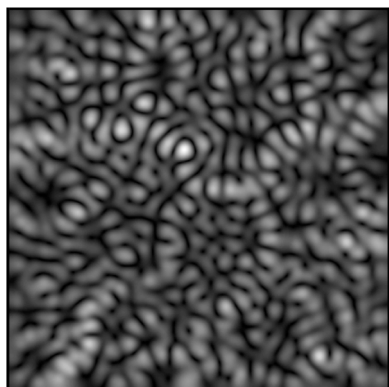
Laser aléatoire cohérent, modes localisés et modes diffus

Peu de temps après l'émergence de cette idée, de premières expériences révèlent l'apparition de pics spectraux étroits et multiples dans le spectre d'émission d'un laser aléatoire à base de poudres d'oxyde de zinc, qui semblent caractéristiques d'une sélection modale assurée par le processus de rétroaction [Cao 1999]. L'observation d'une statistique poissonnienne de photons renforce bientôt la conviction que ce processus de rétroaction garantit la cohé-



Première observation de pics spectraux étroits dans l'émission d'un laser aléatoire [Cao 1999]. Poudres d'oxyde de zinc (taille de grain 100nm) pompées à 355nm par des pulses laser de 15ps, sur une surface de 980 mm² (en bas)/1350 mm² (en haut).

rence de la lumière émise [Cao 2001] – on parle alors de laser aléatoire cohérent. Rapidement, des modèles sont développés qui proposent d’expliquer ces observations en termes de localisation d’Anderson [Jiang 2000, Vanneste 2001] : les modes localisés formeraient des cavités fermées à l’origine des propriétés de la lumière émise.



Intensité du champ électromagnétique correspondant à un mode étendu dans un laser aléatoire [Vanneste 2007]

Cependant, l’observation du phénomène de localisation d’Anderson requiert un degré de diffusion extrême, de sorte que le libre parcours moyen soit de l’ordre de grandeur de la longueur d’onde de la lumière. Beaucoup d’expériences de laser aléatoire conduites jusqu’à présent n’atteignent pas ce régime, dans lesquelles des structures spectrales étroites sont malgré tout mises en évidence⁴ (voir par exemple [Cao 1998, Frolov 1999]). De nouveaux modèles ont donc été développés pour expliquer l’apparition de ce type de structures dans des milieux modérément diffusants. Ils montrent que des modes étendus du

champ, bénéficiant d’une interaction importante avec les éléments fournissant du gain, peuvent être préférentiellement amplifiés, et conduire eux aussi à une sélection spectrale [Apalkov 2002, Vanneste 2007]. Des expériences récentes, permettant de réaliser une carte du champ au voisinage d’une surface par des mesures en champ proche confirment que, dans des systèmes quasi 2D, des modes du champ spatialement étendus comme des modes plus localisés sont susceptibles de contribuer à l’émission laser [Fallert 2009, Takeda 2011].

Différents modèles tentent de prendre en compte les modes étendus du champ pour décrire les caractéristiques observables d’un laser aléatoire telles que son spectre, son seuil, sa statistique de photons ou les fluctuations de l’intensité qu’il rayonne [Türeci 2008, Goetschy 2011]. Notons d’ailleurs que, au voisinage du seuil du laser aléatoire, l’intensité rayonnée vers un détecteur ponctuel présente de larges fluctuations d’une configuration à une autre, bien décrites par les distributions de Lévy que nous étudierons plus en détail dans la troisième partie de cette thèse [Lepri 2007]. Globalement cependant, la comparaison directe entre les résultats de ces modèles et l’expérience reste délicate, du fait de la difficulté qui peut exister à caractériser les milieux utilisés pour obtenir un laser aléatoire.

4. Plus, les phénomènes d’interférence semblent façonner les propriétés d’émission de tous les lasers aléatoires réalisés jusqu’à maintenant, que l’on peut par conséquent qualifier de “cohérents” – par opposition au phénomène de bombe photonique, dans lequel la rétroaction est perçue uniquement comme un effet d’intensité moyenne en régime diffusif, et où tout effet de cohérence du rayonnement est négligé.

Laser aléatoire à atomes froids

Réaliser un laser aléatoire dans un nuage d'atomes froids est susceptible de rendre cette comparaison directe possible. Soumis à un pompage optique externe, des atomes tels que ceux de rubidium peuvent fournir du gain ; des nuages de rubidium ont d'ailleurs déjà été utilisés comme milieux à gain dans des lasers en cavité [Hilico 1992, Guerin 2008, Vrijssen 2011]. Ils sont donc susceptibles d'assurer à la fois l'amplification et la diffusion résonante de la lumière – un cas particulièrement intrigant, dans la mesure où le caractère résonant de la diffusion renforce la sélectivité du processus de rétroaction [Gottardo 2008]. De plus, les atomes sont tous identiques, et leur interaction avec la lumière peut être décrite par des modèles *ab initio*. Enfin, le fait de refroidir considérablement l'échantillon permet de limiter fortement la redistribution par effet Doppler durant la diffusion, d'éviter les pertes qu'elle peut engendrer, et de simplifier les modèles.

Cependant, pomper les atomes tend à les saturer et à faire chuter l'efficacité du processus de diffusion. Combiner gain et diffusion de façon à pouvoir atteindre expérimentalement le seuil du laser aléatoire dans un nuage d'atomes froids n'est donc pas immédiat.

Dans cette seconde partie, nous commencerons par décrire des tests expérimentaux de spectroscopie "pompe-sonde" visant à valider les modèles de l'interaction lumière-atomes décrits au chapitre II, dans des situations où les atomes, pompés par un ou plusieurs faisceaux externes, sont susceptibles de fournir du gain. Nous chercherons ensuite à déterminer les conditions optimales devant permettre la réalisation d'un laser aléatoire continu, notamment en tâchant d'optimiser la taille critique de l'échantillon à atteindre pour franchir le seuil laser. Enfin, dans le quatrième chapitre, nous décrirons et tenterons de comprendre les observations expérimentales réalisées dans de telles conditions.

Faisabilité d'un laser aléatoire à atomes froids : évaluation des mécanismes de gain

Ce chapitre vise à cerner les conditions dans lesquelles il peut être possible de réaliser un laser aléatoire dans un nuage d'atomes froids ; il constitue en quelque sorte une étude de faisabilité. Nous présenterons tout d'abord le système expérimental nous permettant de réaliser et de caractériser notre échantillon d'atomes froids. Il nous permettra ensuite de mettre en évidence par des expériences de spectroscopie pompe-sonde des configurations dans lesquelles notre échantillon peut fournir du gain - configurations d'intérêt pour le laser aléatoire : gain Mollow, mélange à quatre ondes, gain Raman Zeeman et hyperfin. Ces mesures serviront de tests des modèles de la réponse atomique présentés au chapitre II. Nous utiliserons enfin ces modèles pour déterminer le seuil - en épaisseur optique - d'un laser aléatoire basé sur les différents mécanismes de gain mis en évidence, et chercherons à identifier la meilleure stratégie pour l'observation du laser aléatoire - celle qui sera mise en oeuvre au chapitre IV.

Le travail présenté dans ce chapitre s'inscrit dans la continuité des efforts menés à l'INLN depuis 2006 pour caractériser les mécanismes de gain pouvant être mis en place dans un nuage d'atomes froids et leur possible application au laser aléatoire [Guerin 2008, Michaud 2008, Froufe-Pérez 2009]. Il a donné lieu à deux publications durant cette thèse [Guerin 2009, Guerin 2010].

III.1 Dispositif expérimental

Principe du piège magnéto-optique

L'échantillon que nous allons utiliser dans la deuxième partie de cette thèse pour étudier la diffusion de la lumière en présence de gain est un nuage de rubidium refroidi à quelques dizaines de micro-kelvins au sein d'un piège magnéto-optique (ou MOT, pour Magneto-

optical trap). Le principe du piège magnéto-optique a été proposé dans le milieu des années 80 par J. Dalibard, et mis en pratique peu après [Raab 1987].

Son fonctionnement repose sur deux ingrédients : une force de dissipation, permettant de ralentir et de refroidir les atomes, et une force de rappel, les maintenant au voisinage du centre du piège.

La force de friction est créée par 3 paires de deux faisceaux contra-propageants, orientés selon trois directions orthogonales de l'espace, et désaccordés vers le rouge par rapport à la transition atomique la plus proche. Ainsi, dans le référentiel de repos d'un atome animé d'une vitesse positive selon la direction \mathbf{e}_x , le laser se propageant dans la direction $-\mathbf{e}_x$ est décalé par effet Doppler vers la résonance atomique ; il est donc diffusé efficacement par l'atome, et tend à lui transférer de la quantité de mouvement – c'est la force de pression de radiation. A l'inverse, le laser contra-propageant voit sa fréquence éloignée de la fréquence de résonance atomique, de sorte que son impact est diminué. La force résultante tend à ralentir les atomes indépendamment de leur position.

La force de rappel supplémentaire est, quant à elle, obtenue en ajoutant dans le système un gradient de champ magnétique, selon un principe exposé sur la figure III.1. Nous ne détaillerons pas plus avant ici le principe de fonctionnement du MOT, très bien documenté dans la littérature [Metcalf 1999, Dalibard 2006].

III.1.1 Vue d'ensemble de l'expérience

La réalisation pratique d'un piège magnéto-optique nécessite à minima de disposer d'une chambre à vide, permettant d'isoler une espèce atomique de tout gaz chaud susceptible d'entraîner une thermalisation par collisions ; de lasers, permettant d'assurer le refroidissement, dont la fréquence doit pouvoir être ajustée au voisinage de la fréquence de la transition atomique utilisée pour le refroidissement avec une précision au moins comparable à la largeur naturelle de l'état excité ; et de bobines permettant de générer le champ magnétique nécessaire au piégeage (voir figure III.2).

Notre dispositif expérimental permet de piéger et de refroidir des atomes de rubidium 85 en utilisant la transition fermée $F = 3 \rightarrow F' = 4$ de la raie D2 du rubidium. Son originalité principale est de permettre de piéger un grand nombre d'atomes (quelques 10^{10}). L'expérience a été mise en place à Nice au milieu des années 90 ; cependant, de nombreux éléments ont été modifiés durant cette thèse, dans le but d'atteindre des épaisseurs optiques élevées, d'explorer de nouvelles configurations de pompage ou d'effectuer de nouveaux diagnostics sur les échantillons. Dans ce paragraphe, nous donnerons les principales caractéristiques du dispositif expérimental dans son état actuel. Des détails supplémentaires sur les sources laser utilisées, le système à vide, ou les différents régimes de fonctionnement du piège et les facteurs limitant le nombre d'atomes piégés

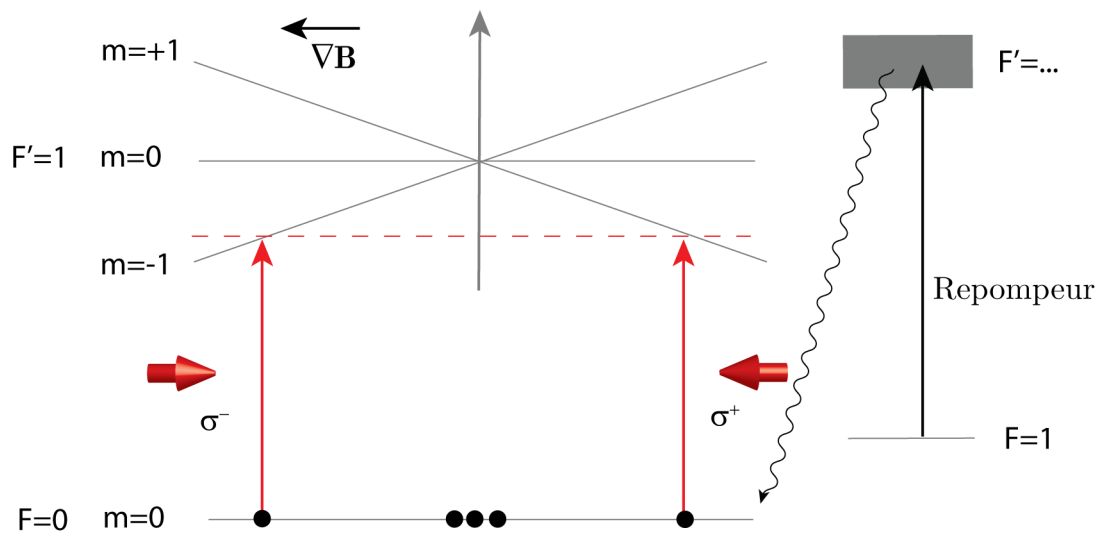


Figure III.1 – **Principe de fonctionnement d'un piège magnéto-optique.** Deux bobines en configuration anti-Helmoltz permettent de créer au centre du piège des gradients de champ magnétique selon les trois directions de l'espace. Ce champ magnétique lève la dégénérescence des niveaux de moment cinétique total non-nul, notamment ici du niveau excité $F' = 1$. Les lasers contra-propageants utilisés pour le piégeage, décalés vers le rouge par rapport à la résonance atomique, possèdent des polarisations circulaires opposées. Chacun ne peut induire une transition que vers l'un des sous-niveaux Zeeman du niveau excité. Lorsqu'un atome est éloigné du centre du piège (point d'annulation du champ magnétique), la fréquence de la transition vers l'un des sous-niveaux est diminuée par effet Zeeman ; le laser susceptible d'induire cette transition est alors quasi-résonant, et tend à repousser l'atome vers le centre du piège. On note que, pour des atomes possédant plusieurs niveaux stables ou métastables, un laser repompeur peut être nécessaire pour maintenir tous les atomes dans l'état utilisé pour le piégeage.

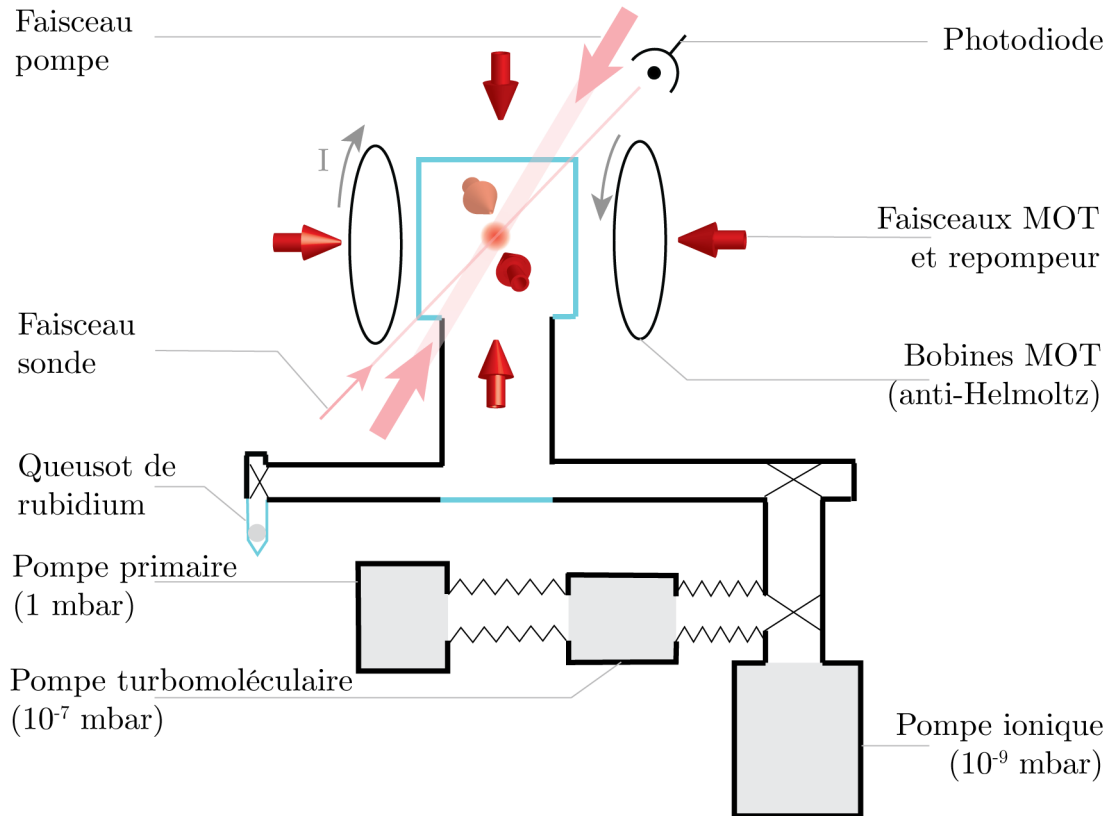


Figure III.2 – Vue d'ensemble du dispositif expérimental.

sont disponibles dans les thèses de G.L. Gattobigio [Gattobigio 2008] et F. Michaud [Michaud 2008].

Système à vide

Dans notre montage, le piège-magnéto optique est chargé directement à partir d'une vapeur de rubidium (voir figure III.2). Une vanne permet d'ajuster le flux de rubidium circulant depuis une source – une goutte de rubidium déposée au sein d'un queusot – vers la chambre à vide, et donc la pression de la vapeur à partir de laquelle est constitué le MOT. Celle-ci est typiquement de l'ordre de 10^{-9} à 10^{-7} mbar – cette pression étant estimée à partir du courant circulant dans la pompe ionique.

Le MOT lui même est réalisé au sein d'une cellule de quartz cubique de 10 cm de côté, dont la cohésion mécanique est assurée par un collage moléculaire des faces (marque Hellma). Cette cellule sans montants métalliques permet d'obtenir un large accès optique

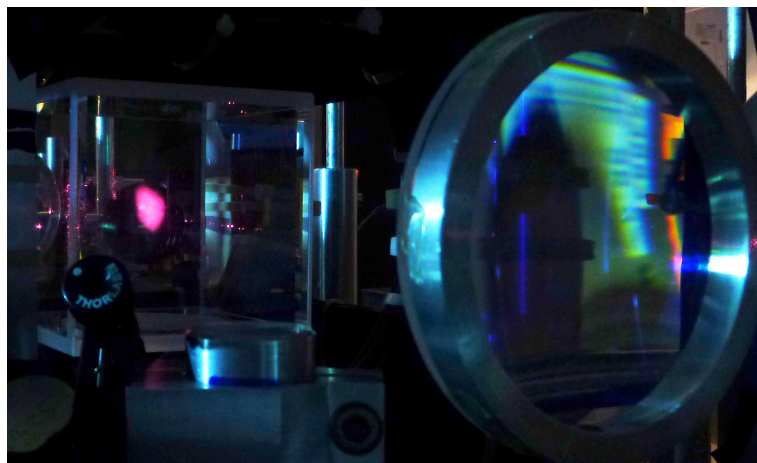


Figure III.3 – Photographie du MOT, faisant apparaître la cellule à vide et l'une des grandes lentilles utilisées pour la collimation des faisceaux du piège.

(voir figure III.3). Toute la connectique ultravide est assurée par des composants (tubes, vannes et hublots) de norme CF.

En fonctionnement normal, le vide est assuré par une simple pompe ionique ; le modèle anciennement utilisé, arrivé en fin de vie après 15 ans d'utilisation, a été remplacé récemment par une pompe Varian Vacion Plus (diode 27 l/s), pilotée par un contrôleur Varian Dual.

Système laser

De nombreuses sources laser sont utilisées dans l'expérience pour piéger les atomes, les pomper ou les sonder lors d'expériences de spectroscopie d'absorption pompe-sonde ou d'étude de la diffusion en milieu actif. Toutes fonctionnent à une longueur d'onde voisine de 780nm, correspondant à la transition D2 du rubidium. Trois sources laser principales indépendantes sont asservies en fréquence par un dispositif d'absorption saturée.

Une diode DBR (Distributed Bragg Reflector, Yokogawa YL78XN), de puissance nominale 5mW, et de largeur nominale 2MHz, est utilisée comme laser maître des faisceaux du piège. Elle subit une amplification à deux étages, d'abord via une diode injectée (SDL5401-G1), puis via un amplificateur (Sacher S-780-0709-0023) qui permet d'obtenir une puissance maximale de 2W. Après passage via un dispositif acousto-optique dont on sélectionne le premier ordre de diffraction et filtrage spatial, environ 500mW restent disponibles pour les faisceaux du piège. Ceux-ci sont divisés en 3 paires de faisceaux contrapropageants à l'aide de cubes polarisants, et magnifiés via deux télescopes. In fine, les faisceaux du piège possèdent un waist de 3.4cm, pour une intensité maximale au centre de l'ordre de $3\text{mW}/\text{cm}^2$. Leur grand diamètre constitue l'originalité principale

de notre dispositif expérimental ; il est la clé permettant de piéger un nombre d'atomes élevé par rapport à ce qui est couramment atteint dans les expériences de refroidissement laser.

Le dispositif acousto-optique placé sur le trajet du laser piège permet de contrôler son extinction. Lorsque le piège est éteint, le faisceau issu de l'amplificateur "MOPA", dont la fréquence est réajustée par plusieurs dispositifs acousto-optiques, peut être utilisé comme pompe. 80mW sont disponibles à cet effet. Une sonde de faible puissance (1mW) est également dérivée des faisceaux MOT, ce qui permet de disposer de lasers pompe-sonde asservis en phase.

Un repompeur est obtenu à partir d'une diode DFB (Distributed Bragg Reflector Toptica SN.AC.03992, 80mW) asservie indépendamment du piège ; 15mW sont disponibles pour éclairer le MOT, qui peuvent être concentrés en un faisceau unique rétro-réfléchi ou divisés en 6 faisceaux superposés à ceux du piège. La largeur spectrale de ce laser n'a pas été mesurée, mais elle est de l'ordre de 2 à 3 MHz pour des dispositifs similaires. Enfin, une diode (Hitachi HL7851G) en cavité externe (dont le montage a été développé au laboratoire SYRTE de l'Observatoire de Paris [Baillard 2006]) fournit une sonde supplémentaire indépendante. La somme des largeurs spectrales du faisceau issu du "MOPA" et de cette sonde a été déterminée par une expérience de battements et vaut 2.8MHz.

La configuration du système laser est détaillée sur la figure III.4.

Champ magnétique

Le gradient de champ magnétique nécessaire au piégeage est obtenu par deux bobines en configuration anti-Helmoltz, permettant d'obtenir un gradient typique de 10 Gauss/cm pour un courant d'alimentation de 3A. L'alimentation (TDK Lambda) utilisée permet un contrôle analogique du courant, qui peut être modifié de 3A en 35ms (extinction à 90%). Pour une extinction plus rapide, on utilise un transistor de puissance MOSFET qui permet d'obtenir une extinction à 90% en 80 μ s (bien sur, la qualité de l'extinction obtenue après quelques centaines de μ s est bien meilleure, et aucune levée de dégénérescence des sous-niveaux Zeeman ne peut alors être mise en évidence par spectroscopie Raman).

Cycle expérimental

Pour réaliser des expériences de spectroscopie ou tenter d'observer un laser aléatoire dans un nuage d'atomes froids, on souhaite disposer d'un échantillon qui ne soit pas perturbé par les faisceaux ou le champ magnétique du piège. Toutes les expériences

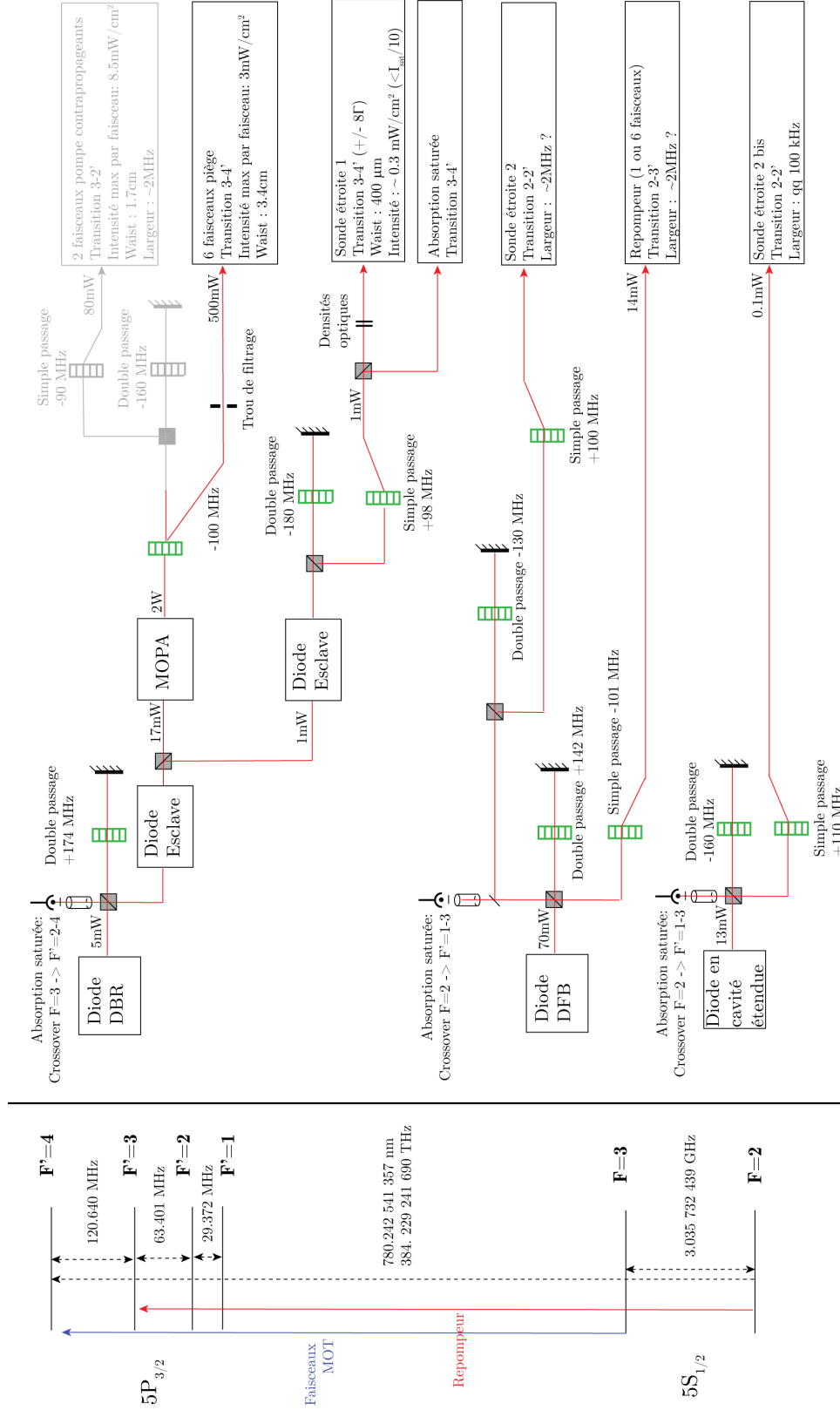


Figure III.4 – Schéma de la configuration actuelle du système laser. Les systèmes permettant d'ajuster la fréquence de la pompe varient en fonction des expériences réalisées (partie grisée) ; la configuration présentée ici est celle utilisée pour obtenir du gain Raman hyperfin. A gauche, niveaux d'énergie du rubidium 85.

réalisées sont donc cycliques, et comportent des phases de préparation et d'exploitation de l'échantillon, dont les plus importantes sont :

- **Le MOT** (30ms - 3s) : on piège jusqu'à 5×10^{10} atomes au sein du MOT en un temps de chargement de l'ordre de 3s (dépendant de la densité de la vapeur initiale). Le désaccord du repompeur par rapport à la transition $F = 2 \rightarrow F' = 3$ est nul, celui des faisceaux du piège vaut -3Γ - où $\Gamma/2\pi = 6.066\text{MHz}$ est la largeur de l'état excité $^5\text{P}_{3/2}$ de la raie D2 du rubidium. Si l'échantillon n'est pas détruit durant les phases suivantes, la durée de la phase MOT peut être considérablement raccourcie (jusqu'à quelques centaines voire dizaines de ms) pour augmenter la fréquence des mesures, sans pour autant perdre en nombre d'atomes. Jouer sur la durée de la phase MOT ou l'intensité du repompeur permet d'ajuster le nombre d'atomes chargés dans le piège.
- **Le piège noir** (0-50ms) : Dans les MOT de grande taille, la densité est limitée par la répulsion entre les atomes induite par la diffusion multiple [Sesko 1991]. Durant la phase de piège noir (Dark MOT), on diminue l'intensité du repompeur (1% de sa valeur maximale). Les atomes basculent alors progressivement dans l'état $F = 2$, dans lequel ils ne diffusent plus la lumière des faisceaux du piège ; la densité et donc l'épaisseur optique augmentent. Le nombre d'atomes piégés diminue durant cette phase, mais les pertes restent limitées à 15% de la population totale environ si la durée du piège noir n'excède pas 25ms. Par ailleurs, le désaccord des faisceaux du piège est accru pendant cette phase (-6Γ) pour limiter l'impact de la diffusion multiple, tandis que le gradient de champ magnétique est approximativement doublé pour accélérer la compression.
- **L'étape de mesure** (0-2ms) : on coupe l'ensemble des faisceaux du piège et le gradient de champ magnétique ; l'échantillon est disponible pour des expériences de spectroscopie pompe sonde, ou pour réaliser un laser aléatoire.

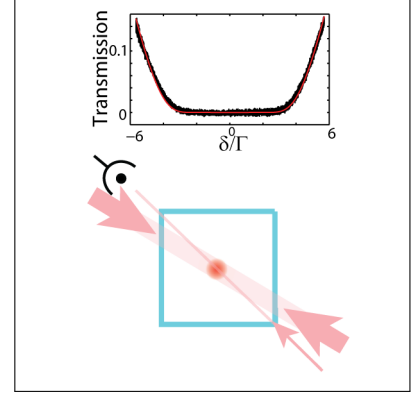
Les dispositifs acousto-optiques, qui contrôlent la fréquence et l'intensité des différents faisceaux, et les oscillateurs radiofréquence qui les alimentent, sont pilotés par des cartes analogiques programmables 0-10V (NIPCI 6723), qui assurent le fonctionnement du cycle expérimental. Le pas de temps de ces cartes est limité à $10\mu\text{s}$; deux générateurs programmables (Agilent 33220A) supplémentaires fournissent des sorties analogiques de pas de temps 3ns, qui permettent de balayer plus rapidement la fréquence d'un laser et donc de réaliser des spectres de transmission pompe-sonde sans pour autant détruire l'échantillon. Ces systèmes de contrôle, de même que les dispositifs de mesure utilisés dans l'expérience (oscilloscope et caméra CCD) sont pilotés via une interface Matlab unique développée conjointement durant cette thèse avec J.-F. Schaff.

III.1.2 Dispositifs de caractérisation de l'échantillon

Plusieurs dispositifs sont à notre disposition pour caractériser l'échantillon ou étudier les propriétés de la lumière qu'il émet lorsqu'il est soumis à un éclairage externe.

Spectroscopie pompe sonde

Une première méthode de caractérisation consiste à mesurer à l'aide d'une photodiode (efficacité quantique 96%, gain $5 \times 10^4 \text{ V/W}$, bande passante à -3db : $[0 - 10\text{MHz}]$) la transmission au travers du nuage d'une sonde de faible diamètre – devant la taille de l'échantillon. Deux sondes sont disponibles à cet effet, et leurs caractéristiques sont listées sur la figure III.4. Trois mesures sont nécessaires pour déterminer le coefficient de transmission du nuage : intensité détectée en l'absence de sonde (I_{offset}), puis en l'absence (I_{ref}) et en présence (I_{signal}) d'atomes dans le piège. Ainsi :



$$T = \frac{I_{\text{signal}} - I_{\text{offset}}}{I_{\text{ref}} - I_{\text{offset}}} \quad (\text{III.1})$$

Cette méthode permet de déterminer le coefficient de transmission sans avoir à connaître l'intensité de la sonde, et donc en s'affranchissant de ses variations en fonction des conditions expérimentales (désaccord du faisceau, polarisation,...). Elle n'est toutefois valable que pour une réponse linéaire du nuage vis à vis de l'intensité sonde.

La mesure de la transmission du système passif en fonction du désaccord δ d'une sonde autour de la transition fermée $F = 3 \rightarrow F' = 4$ nous permet d'obtenir l'épaisseur optique à résonance b_0 de l'échantillon¹. Si l'on suppose les populations d'un niveau hyperfin équi-réparties entre ses sous-niveaux Zeeman², la section efficace d'extinction σ_{ext} des atomes est donnée par (equation II.72)

$$\sigma_{\text{ext}}(\delta) = \frac{\mathcal{C}\sigma_0}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} \quad (\text{III.2})$$

où σ_0 est la section efficace de diffusion d'un atome à deux niveaux éclairé à résonance, et $\mathcal{C} = 3/7$ un facteur qui permet de prendre en compte la structure multi-niveaux du rubidium. La transmission s'écrit alors :

$$T(\delta) = \exp \left[-b_0 \frac{1}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} \right] \quad (\text{III.3})$$

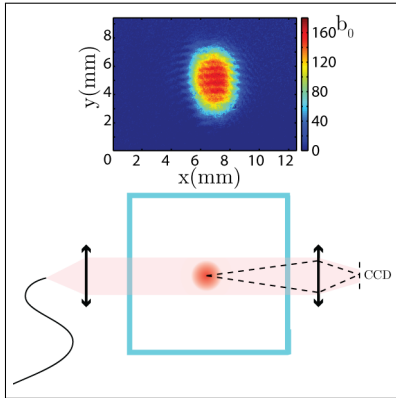
1. Cette épaisseur optique dépend de la transition considérée. Dans la suite, on notera systématiquement b_0 l'épaisseur optique du nuage pour de la lumière résonante avec la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$, et \tilde{b}_0 l'épaisseur optique à résonance équivalente que possèderait le nuage s'il était composé d'atomes à deux niveaux.

2. Dans les modèles utilisés par la suite, on suppose toujours que les bruits résiduels liés aux fluctuations du champ magnétique ou à la diffusion multiple de la lumière mélangent en permanence ces populations.

Un ajustement par cette fonction de la courbe de transmission mesurée expérimentalement permet d'obtenir une bonne estimation de l'épaisseur optique de l'échantillon, sans avoir à connaître précisément la fréquence de la résonance atomique (l'origine des fréquences peut être laissée libre lors de l'ajustement). Par contre, elle nécessite de s'assurer que la sonde passe bien au centre du nuage. Enfin, en principe, si le spectre du laser sonde présente une certaine largeur, une convolution de la fonction T et du spectre est nécessaire pour calculer correctement la transmission. La figure III.5 montre cependant que l'impact de ce processus de correction sur l'épaisseur optique estimée est négligeable³ pour une sonde de largeur 2MHz, et dans la gamme d'épaisseurs optiques qui nous intéresse.

Bien sûr, le dispositif permet également de déterminer la transmission de l'échantillon en présence d'une pompe, et donc de mettre en évidence, par exemple, des mécanismes d'amplification. Nous l'utiliserons au paragraphe suivant pour tester nos modèles de gain.

Imagerie d'absorption



L'imagerie d'absorption consiste à réaliser une carte de la transmission au travers du nuage d'une sonde collimatée de grande taille devant le diamètre de l'échantillon. On utilise à cette fin une caméra CCD (PGR Dragonfly Express) munie d'un capteur Kodak KAI-0340DM 8 bits de 640×480 pixels, capable d'enregistrer 15 images par seconde à pleine résolution. Comme pour la mesure précédente, la réalisation de trois images permet de s'affranchir des variations d'intensité de la sonde (avec la position notamment). Les échantillons imagés ici ont une taille caractéristique variant du mm au cm, de sorte

qu'un doublet de lentilles unique conférant un grandissement de 0.32 suffit à réaliser l'imagerie.

La réalisation d'une image permet de déterminer la taille transverse de l'échantillon. En connaissant le désaccord de la sonde, on peut transcrire la carte de transmission obtenue en une carte de l'épaisseur optique. Pour traiter les images, on fait ensuite l'hypothèse que la densité dans le nuage est donnée par une fonction gaussienne, d'écart-type σ_j selon l'axe j ; cette hypothèse n'est bien vérifiée que dans des régimes de densités faibles, mais

3. Toutefois, pour obtenir ce résultat, nous avons soustrait un offset à la courbe de transmission mesurée avant de procéder à notre ajustement. Cet offset correspond à la transmission résiduelle à haute épaisseur optique d'une sonde résonante, attribuée au piédestal du laser sonde. Nous n'avons plus à réaliser cette opération si nous décrivons le spectre du laser incident comme lorentzien.

permet d'obtenir une bonne estimation du nombre d'atomes ou de la densité dans une large gamme de paramètres [Gattobigio 2008]. Il est nécessaire de choisir le désaccord δ de la sonde par rapport à la résonance atomique de sorte que la transmission la plus faible soit cependant mesurable (épaisseur optique effective de l'ordre de 1). Dans ces conditions, le nombre total N d'atomes piégés est donné par :

$$N = 2\pi\sigma_x\sigma_y \frac{b(\delta)}{\sigma_{sc}(\delta)} \quad (\text{III.4})$$

où $b(\delta)$ est l'épaisseur optique mesurée selon un axe z passant par le centre du nuage. La densité n_0 au centre du nuage vaut alors :

$$n_0 = \frac{N}{(2\pi^{3/2}\sigma_x\sigma_y\sigma_z)} \quad (\text{III.5})$$

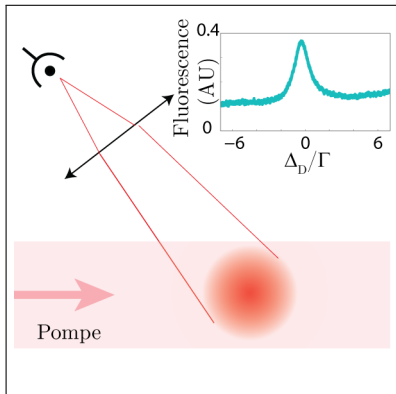
et l'on suppose en général la géométrie du nuage quasi sphérique, de sorte que :

$$\sigma_z = \frac{\sigma_x + \sigma_y}{2} \quad (\text{III.6})$$

Notons que la densité au centre obtenue dans l'hypothèse de nuages gaussiens est sur-estimée – notamment par rapport à ce que l'on obtient dans l'hypothèse d'un nuage homogène – et la valeur obtenue ne donne qu'un ordre de grandeur de n_0 .

A priori, l'imagerie d'absorption permet d'accéder à davantage d'information que la mesure de la transmission d'une sonde fine au travers d'un échantillon passif. Toutefois, elle nécessite de connaître et de contrôler avec précision le désaccord de la sonde. D'autre part, on préfère en général réaliser les images d'étalonnage à la suite des images d'absorption, pour éviter toute variation de l'intensité de référence et limiter ainsi l'apparition de franges d'interférence sur l'image. Dans ce cas, l'imagerie d'absorption est longue (200ms) et détruit l'échantillon.

Intensité du rayonnement de fluorescence



Le rayonnement de fluorescence du nuage est collecté dans un angle solide d'environ 0.01sr à l'aide d'une lentille simple (focale 100mm, diamètre 50.8mm), qui réalise l'image du nuage sur une photodiode (capteur d'environ 4×6 mm, gain 1.3×10^7 V/W, bande passante à -3 dB : $[0 - 600\text{kHz}]$). L'axe de détection fait un angle d'environ 40° avec l'axe des pompes. Le système est à symétrie centrale, et on fera l'hypothèse dans la suite que l'intensité détectée est proportionnelle à l'intensité totale du rayonnement de fluorescence.

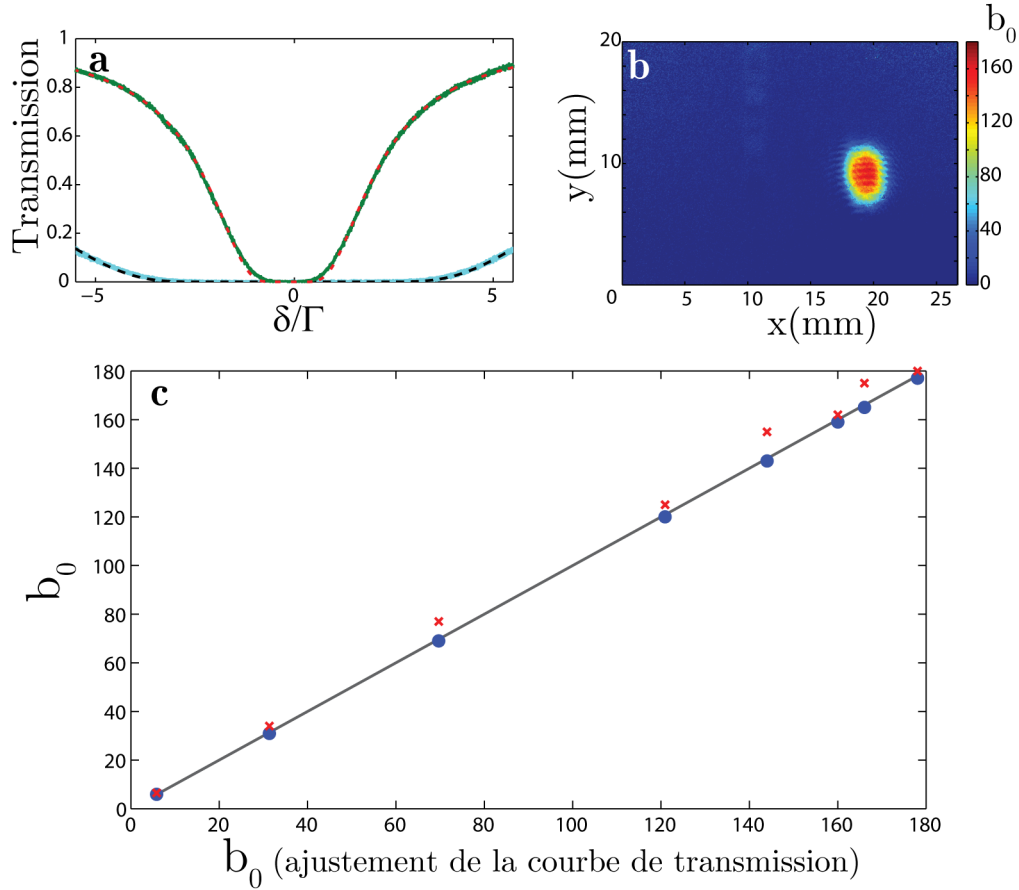


Figure III.5 – **Comparaison des différentes méthodes de mesure de l'épaisseur optique.** **a.** Mesure de la transmission d'une sonde fine en fonction de son désaccord δ par rapport à la résonance atomique (traits continus vert et bleu). Un ajustement par la fonction III.3 donne respectivement $b_0 = 16$ (pointillé rouge) et $b_0 = 252$ (pointillé noir).

b. Image d'absorption, en fausses couleurs, obtenue pour une sonde désaccordée de 7Γ par rapport à la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$. Pour cet échantillon obtenu après 10s de chargement dans le MOT, puis 20ms de piège noir, l'épaisseur optique à résonance b_0 maximale est de 180 ; d'après un ajustement gaussien, le nuage comporte 4.0×10^{10} atomes, et sa densité au centre est de l'ordre de 3×10^{11} atomes/cm³.

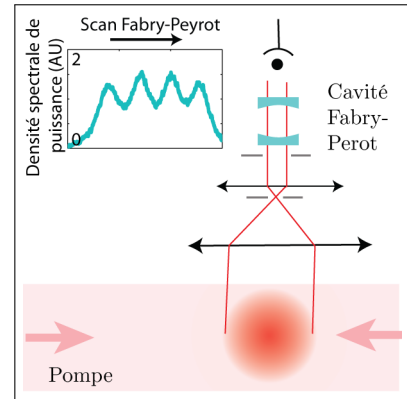
c. Epaisseur optique mesurée via l'imagerie d'absorption (croix rouges) en fonction de l'épaisseur optique donnée par une mesure de transmission en fonction du désaccord. Dans ce dernier cas, b_0 est estimée via un ajustement prenant en compte la largeur spectrale de la sonde de 2MHz. On constate cependant que les résultats obtenus sont très peu modifiés si l'on ne prend pas en compte cette largeur spectrale (cercles bleus) et que l'on utilise simplement la fonction donnée par l'équation III.3 pour l'ajustement. La ligne grise correspond à l'identité.

Les épaisseurs optiques obtenues par imagerie d'absorption et via la mesure de transmission d'une sonde concordent bien ; les valeurs de b_0 légèrement plus faibles obtenue dans le second cas pourraient notamment s'expliquer par un alignement imparfait de notre sonde étroite.

Spectre du rayonnement de fluorescence

Le dernier dispositif de mesure disponible dans notre montage expérimental vise à réaliser des spectres du rayonnement de fluorescence. Un télescope à deux lentilles est utilisé pour collecter le rayonnement de fluorescence du MOT dans un angle solide de 0.45sr , et réaliser une image à l'infini de l'échantillon. Deux diaphragmes permettent de sélectionner un faisceau collimaté, qui est injecté dans une cavité Fabry-Perot. Un photomultiplicateur compteur de photons (Perkin-Elmer MH 972 P, 2% d'efficacité quantique à 780nm, 400 comptes/seconde dans l'obscurité) est utilisé pour mesurer la transmission au travers de la cavité.

On utilise une cavité Fabry-Perot confocale, dont les miroirs sont réalisés sur mesure (société Fibercrest), et possèdent une réflectivité de 80% pour un rayon de courbure de 187mm. La faible réflectivité des miroirs confère une basse finesse à la cavité (14), qui permet d'obtenir une transmission importante même pour un faisceau mal collimaté⁴. Surtout, le rayon de courbure spécifique des miroirs permet d'obtenir un intervalle spectral libre de 400MHz, grâce auquel il est possible de séparer les fréquences des transitions hyperfines $F = 2 \rightarrow F'$ et $F = 3 \rightarrow F'$ du rubidium, superposées dans la plupart des cavités Fabry-Perot du commerce.



En pratique, on obtient une finesse de 9 lorsque l'on analyse le rayonnement de fluorescence du MOT - elle est dégradée par la mauvaise collimation du faisceau injecté dans la cavité - ce qui permet de séparer des raies distantes de 45MHz et plus.

III.1.3 Vers les hautes épaisseurs optiques

La spécificité sans doute la plus importante de notre dispositif expérimental est de permettre de réaliser des nuages d'atomes froids à géométrie sphérique d'épaisseur optique élevée selon toutes les directions, et donc susceptibles de donner lieu à un piégeage radiatif ou à des effets collectifs d'émission importants. Suite aux premières prédictions de seuil du laser aléatoire à gain Mollow, que nous décrirons au chapitre suivant, et selon lesquelles l'épaisseur optique critique pour l'obtention du laser aléatoire est de 300, la réalisation d'échantillons d'épaisseur optique élevée est devenue un objectif en lui-même.

4. Aux dépends bien sûr de la résolution spectrale. Un compromis différent, permettant d'obtenir une résolution améliorée aux dépends cette fois de la transmission, aurait pu constituer un meilleur choix.

Trois éléments clés ont permis de passer des épaisseurs optiques de l'ordre de 100 atteintes avec notre dispositif en 2008 aux épaisseurs optiques allant jusqu'à 300 obtenues actuellement :

- D'une part, l'augmentation du waist w des faisceaux du piège de 2.4 à 3.4cm, qui a permis d'accroître le nombre d'atomes piégés dans le MOT⁵. Elle a nécessité l'adaptation des dispositifs optiques présents sur l'expérience, mais surtout, l'utilisation d'un nouvel amplificateur (MOPA) qui a permis d'accroître la puissance lumineuse disponible pour maintenir l'intensité des faisceaux du piège au voisinage de l'intensité de saturation de la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ malgré l'augmentation en diamètre.
- D'autre part, la bonne maîtrise de l'étape de compression que constitue le piège noir. Elle nécessite de soigner l'alignement deux à deux des faisceaux du piège - pour minimiser les pertes lors du piège noir - mais surtout, d'optimiser finement l'intensité du repompeur, en mesurant l'épaisseur optique après le piège noir. L'intensité repompeur doit pouvoir être ajustée avec une précision du pourcent au moins par rapport à sa valeur durant la phase MOT – ce qui, dans notre expérience, est réalisé via un dispositif acousto-optique.
- Enfin, le fait de charger le piège à partir d'une vapeur de rubidium de pression élevée – de l'ordre de 10^{-7} mbar selon les indicateurs de courant de notre pompe ionique.

La figure III.5 montre un exemple de courbe de transmission d'une sonde au travers d'un échantillon passif d'épaisseur optique 252.

III.2 Mécanismes de gain : tests expérimentaux

Dans le chapitre II, nous avons introduit des modèles permettant de déterminer les propriétés optiques de notre échantillon ; parmi celles-ci , la section efficace d'extinction des atomes joue pour nous un rôle particulièrement important. Lorsqu'elle est négative, l'échantillon constitue un milieu à gain qui peut donner lieu à un laser aléatoire⁶. Nous allons maintenant mettre en évidence de tels mécanismes de gain en mesurant la transmission d'une sonde au travers d'un échantillon pompé, et tester ainsi la validité de nos modèles de la réponse atomique.

La configuration des premiers niveaux excités du rubidium et les valeurs de leurs durées de vie ne permettent pas d'obtenir d'inversion de population dans un système à trois ou quatre niveaux standard⁷, en utilisant la décroissance rapide d'un niveau excité par

5. Pour des faisceaux de petite taille, le nombre d'atomes piégés est proportionnel à w^4 [Gattobigio 2008].

6. Remarquons dès à présent que ce n'est pas une condition nécessaire. Un gain diffus, qui correspond à la génération de puissance dans toutes les directions de l'espace sans amplification vers l'avant, peut parfaitement donner lieu à un laser aléatoire. Une telle situation est cependant difficile à identifier. Nous y reviendrons en fin de chapitre.

7. Toutefois, il peut être possible d'obtenir une inversion de population entre des niveaux hautement

rapport à un niveau inférieur – voir [Heavens 1961, Gomez 2005] pour les caractéristiques des niveaux excités du rubidium. Qui plus est, dans un nuage d’atomes froids, aucun processus de désexcitation non radiatif n’est susceptible de modifier les durées de vie des niveaux. Toutefois, de nombreux autres mécanismes permettent d’obtenir du gain vers l’avant – l’amplification d’une sonde – via une inversion de population dans la base atomique nue ou dans une base habillée, ou encore sans inversion de population dans aucune base [Kitching 1999]. Il est également possible d’obtenir la génération d’un faisceau à la fréquence sonde sans amplification de celle-ci – dans le cas où le bilan de puissance à la fréquence sonde est positif, nous parlerons de gain paramétrique.

III.2.1 Gain Mollow

L’un des mécanismes de gain les plus simples à mettre en place dans un nuage d’atomes froids peut être obtenu en exploitant la non-linéarité de la réponse d’un atome à deux niveaux – et par extension, de tout atome éclairé sur une transition fermée. Ce processus fut décrit par Mollow [Mollow 1972] et observé peu après dans un jet atomique [Wu 1977].

L’atome est éclairé par une pompe D fortement saturante, proche de résonance. On peut se représenter le gain Mollow comme un processus à trois photons, dans lequel deux photons pompe sont absorbés, tandis qu’un autre est généré à la fréquence de la sonde P (voir figure III.6). De cette façon, du gain est obtenu pour un désaccord sonde δ'_P double du désaccord pompe $\delta'_D = \sqrt{\delta_D^2 + \Omega_D^2}$. Remarquons ici que la pompe induit un déplacement lumineux des niveaux atomiques et donc un décalage de la fréquence de transition ; les désaccords δ'_P et δ'_D sont déterminés par rapport à la transition ainsi décalée. Par ailleurs, la pompe et la sonde excitent la même transition atomique, et possèdent donc des polarisations identiques.

Observation expérimentale

En pratique, nous observons le gain Mollow dans notre nuage de rubidium en utilisant une pompe et une sonde faiblement désaccordées par rapport à la transition fermée $F = 3 \rightarrow F' = 4$. La courbe de transmission obtenue est présentée sur la figure III.6. On y voit clairement un minimum de transmission au niveau de la résonance atomique, fortement décalée en fréquence du fait du déplacement lumineux, et un pic de gain, placé de façon symétrique par rapport à la fréquence pompe. La largeur de ce pic de gain est de l’ordre de Γ . On note par ailleurs l’existence d’une structure dispersive au voisinage de la fréquence pompe, où apparaît un petit pic de gain ; il est lié à des processus de

excités ; mais il semble alors difficile de pouvoir combiner le gain obtenu à de la diffusion.

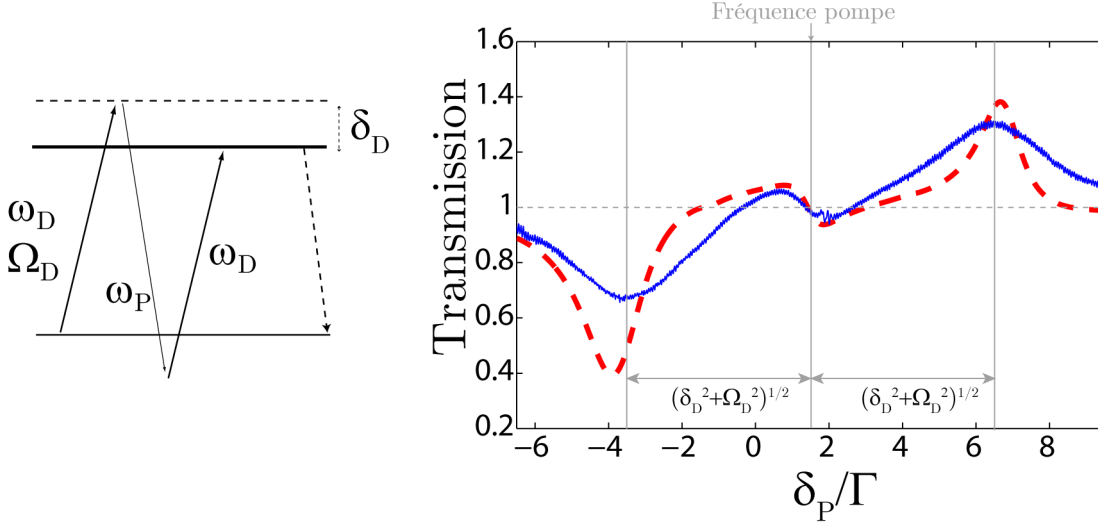


Figure III.6 – **Gain Mollow**. **A gauche** : Principe du gain Mollow, représenté comme une transition à trois photons, dans laquelle deux photons pompe à la fréquence ω_D sont absorbés, tandis qu'un photon sonde à la fréquence ω_P est disponible pour l'émission stimulée. **A droite** : Exemple de gain Mollow, observé en mesurant la transmission au travers d'un nuage de rubidium 85 d'épaisseur optique $b_0 = 8$ d'une sonde dont on varie le désaccord δ_P par rapport à la résonance $F = 3 \rightarrow F' = 4$ (bleu continu). Le nuage est éclairé par deux pompes contra-propageantes d'intensité 100 mW/cm^2 chacune, correspondant à une pulsation de Rabi totale de 5.1Γ ; elles sont désaccordées de $\delta_D = 1.5\Gamma$ par rapport à la résonance atomique, et leur polarisation est parallèle à celle de la sonde. En rouge pointillé, courbe de transmission calculée ab initio. Sans aucun paramètre ajustable, le modèle est en accord qualitatif avec les résultats expérimentaux.

transition à deux photons [Grynberg 1993]. Enfin, on remarque également une structure bruitée au voisinage de la fréquence pompe : c'est la trace résiduelle d'un processus Raman Zeeman, que nous décrirons ci-dessous et qui domine lorsque les polarisations de la pompe et de la sonde sont orthogonales.

Caractéristiques du modèle

Les équations de Bloch optiques pour un atome à deux niveaux permettent parfaitement de décrire la réponse atomique dans la configuration Mollow – leur écriture explicite dans ce cas est donnée dans l'annexe B. Tous les termes oscillants ne peuvent être éliminés, de sorte que la résolution de ces équations n'est pas immédiate. Dans son article original, Mollow utilise une approche perturbative pour obtenir une expression analytique de la polarisabilité atomique à la fréquence sonde valable dans la limite où l'intensité de ce faisceau est faible. Ici, nous employons la méthode générique de résolution par décomposition en matrices de Floquets présentée au chapitre II. Notons que les résultats obtenus via les deux approches pour des atomes à deux niveaux non

dégénérés et dans la limite d'une sonde de faible intensité sont identiques. Toutefois, pour tenter de décrire quantitativement nos observations expérimentales, l'utilisation d'un modèle effectif prenant en compte la structure dégénérée des niveaux du rubidium est nécessaire. Elle conduit à multiplier la section efficace d'extinction obtenue dans le cas deux niveaux par un facteur correctif (voir annexe B) .

Une fois connue la matrice densité, le section efficace d'extinction des atomes est obtenue via les équations II.44 et II.46, puis la transmission via l'équation I.16. Pour plus de détails, se reporter à l'annexe B.

III.2.2 Mélange à 4 ondes

Nous avons également étudié la possibilité de mettre en place un mécanisme de gain paramétrique, le mélange à quatre ondes, dans un système d'atomes à deux niveaux. Lorsqu'un milieu non linéaire est éclairé par trois ondes planes monochromatiques de polarisations identiques, des termes apparaissent dans l'expression de la polarisation des atomes du type (voir equation II.37) :

$$\mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \alpha^{(3)}(\omega_1, \omega_2, -\omega_3) E_1 E_2 E_3^* e^{-i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}} \delta(\omega - [\omega_1 + \omega_2 - \omega_3]) + \dots \quad (\text{III.7})$$

où E_j est l'amplitude complexe de l'onde j , \mathbf{k}_j son vecteur d'onde. Une onde de vecteur d'onde $\mathbf{k}_4 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3$ et de fréquence $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$ peut se propager dans le milieu dès lors qu'une condition d'accord de phase est vérifiée :

$$|\mathbf{k}_4| = \frac{\omega_4}{c(\omega_4)} \quad (\text{III.8})$$

où c est la vitesse de phase des ondes dans le milieu. On parle alors de phénomène de mélange à quatre ondes. En particulier, lorsque tous les faisceaux incidents possèdent la même fréquence ω et que la somme des vecteurs d'onde des pompes 1 et 2 s'annule, un conjugué de fréquence ω contra-propageant à la sonde 3 peut apparaître (figure III.7). Il s'agit d'un mécanisme de mélange à quatre ondes dégénéré, puisque tous les faisceaux possèdent la même fréquence. Dans certaines conditions, la somme des coefficients de transmission T et de réflexion Re de la sonde peut excéder 1, de sorte qu'il existe un gain effectif sur l'axe sonde-conjugué.

Le phénomène de génération d'un conjugué fut initialement décrit dans les années 70 (voir notamment [Hellwarth 1977, Yariv 1977, Abrams 1978a])⁸ et observé peu après dans des vapeurs atomiques à température ambiante [Bloom 1977, Liao 1977]. Bien plus récemment, il a été mis en évidence dans un nuage de rubidium 85 refroidi dans un

8. Notons immédiatement que, dans [Abrams 1978a], un gain effectif ($Re + T > 1$) est obtenu sur l'axe sonde conjugué dans un milieu d'atomes à 2 niveaux, mais en supposant une inversion de population imposée arbitrairement.

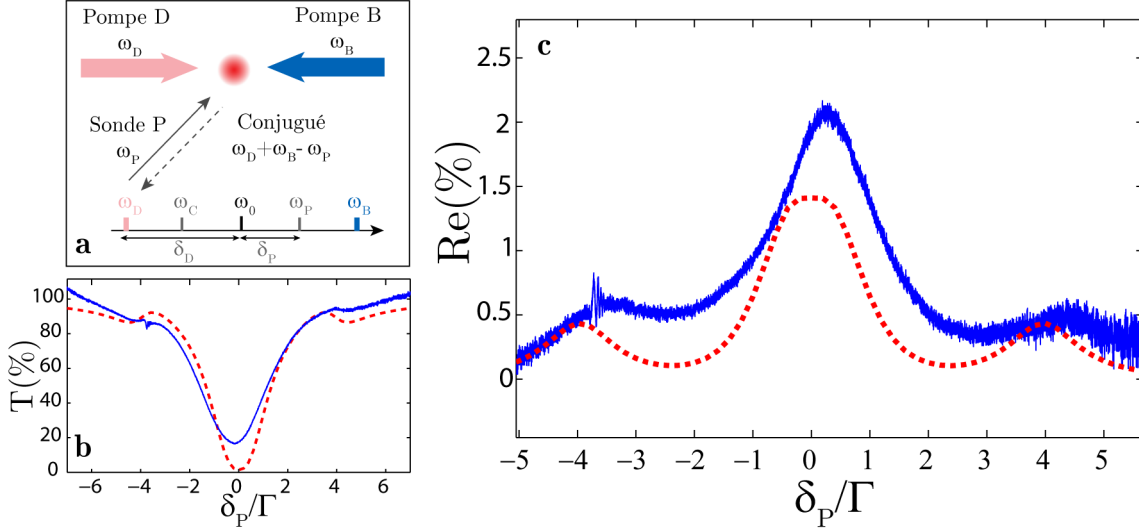


Figure III.7 – Mélange à quatre ondes. **a.** Schéma de principe : l'échantillon est éclairé par deux pompes contra-propageantes D et B de désaccords respectifs δ_D et δ_B par rapport à la résonance atomique, et une sonde de plus faible intensité de désaccord δ_P . Lorsque les désaccords sont faibles, un faisceau conjugué contra-propageant à la pompe peut être généré. **b.** Coefficient de transmission de la sonde en fonction de son désaccord vis à vis de la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ du rubidium 85, mesuré dans un nuage d'épaisseur optique $b_0 = 13$ (bleu continu). Les fréquences des pompes sont placées de part et d'autre de résonance ($\delta_B = -\delta_D = 4\Gamma$); leur intensité de $11\text{mW}/\text{cm}^2$ chacune correspond à une pulsation de Rabi de 2.6Γ . Un modèle *ab initio* (équation III.13), sans aucun paramètre ajustable, est en bon accord avec l'expérience (rouge pointillé). **c.** Coefficient de réflexion mesuré (bleu continu) et calculé (rouge pointillé) dans les mêmes conditions.

piège magnéto-optique [Brzozowski 2005], utilisé pour réaliser un laser en cavité dans le même système [Guerin 2008], ou encore un laser basé sur une rétroaction fournie par des couches ordonnées d'atomes [Schilke 2011].

Observation expérimentale

De très nombreuses configurations peuvent permettre l'observation du phénomène de mélange à quatre ondes dans une vapeur de rubidium; essentiellement, il suffit de choisir les fréquences des trois faisceaux externes éclairant un milieu non linéaire de sorte que le coefficient $\alpha^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ soit non nul. Si les trois faisceaux externes sont co-propageants, la condition d'accord de phase est automatiquement vérifiée. En excitant par exemple trois des quatre transitions d'un système en configuration diamant, on peut générer un quatrième faisceau à une nouvelle fréquence [Akulshin 2009].

La configuration de pompes contra-propageantes présente l'avantage de pouvoir, quelle que soit la direction d'incidence de la sonde, générer un conjugué à la même fréquence.

L'obtention d'un gain effectif à une fréquence donnée est donc possible. Cela a été démontré par la réalisation d'un laser en cavité [Guerin 2008], en exploitant la non linéarité de la réponse d'un atome multi-niveaux. Cependant, le mélange à quatre ondes dégénéré utilisé constitue simplement une modification de la direction de propagation de la lumière pompe, sans conversion en fréquence, et non un mécanisme de gain susceptible d'alimenter un laser aléatoire.

Nous avons donc cherché à obtenir la génération d'un conjugué et un gain paramétrique en utilisant deux pompes de fréquences distinctes, situées de part et d'autre de la fréquence sonde : $\omega_{D,B} = \omega_P \pm \Delta$. Il est possible d'exploiter à cette fin la non linéarité de la réponse d'un atome à deux niveaux⁹ [Boyd 1981]. Qui plus est, en plaçant les pompes de part et d'autre de la résonance atomique, on peut espérer avoir une sonde et un conjugué à résonance, et combiner ainsi efficacement gain et diffusion.

Pour tester ce mécanisme, nous avons utilisé deux faisceaux pompes et un faisceau sonde dont la fréquence peut être ajustée indépendamment autour de la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$. Des exemples de courbes expérimentales obtenues, montrant les coefficients de transmission et de réflexion de la sonde en fonction de son désaccord, sont présentés sur la figure III.7. Dans toutes les configurations testées, la somme des coefficients de transmission et de réflexion reste inférieure à 1, de sorte qu'un laser en cavité basé sur ce mécanisme est impossible. Ce n'est pas nécessairement surprenant, puisque la sonde, résonante, est fortement diffusée. Reste à savoir s'il existe ou non un gain diffus. Pour cela, le recours à nos modèles ab initio est nécessaire.

Caractéristiques du modèle

Comme dans le cas du gain Mollow, les équations de Bloch optiques II.13 permettent d'obtenir la polarisation atomique en fonction de la position de l'atome – l'écriture explicite des matrices de Floquet utilisées pour les résoudre numériquement est donnée dans l'annexe B. Le calcul des coefficients de transmission et réflexion, cependant, n'est pas aussi immédiat que précédemment. La polarisation comporte à minima deux termes, qui s'écrivent en fonction de l'amplitude E_P du champ sonde incident :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(\mathbf{r}, \omega) = & \epsilon_0 \alpha^{(1)}(\omega_P) E_P e^{-i\mathbf{k}_P \cdot \mathbf{r}} \delta(\omega - \omega_P) \\ & + \epsilon_0 \alpha^{(3)}(\omega_D, \omega_B, -\omega_P) E_D E_F E_P e^{-i(\mathbf{k}_D + \mathbf{k}_B - \mathbf{k}_P) \cdot \mathbf{r}} \delta(\omega - [\omega_D + \omega_B - \omega_P]) + \dots \end{aligned} \quad (\text{III.9})$$

Une transformée de Fourier spatiale des composantes de la polarisation de fréquences ω_P et $\omega_D + \omega_B - \omega_P$ nous permet d'isoler les coefficients $\alpha^{(1)}(\omega_P)$ et $\alpha^{(3)}(\omega_D, \omega_B, -\omega_P)$

9. Toutefois, la condition d'accord de phase n'est plus rigoureusement vérifiée. L'expérience montre cependant que, dans notre échantillon de taille finie, et pour les faibles désaccords que nous considérons, la propagation du conjugué reste possible.

(voir l'annexe B pour plus de détails).

Les équations de propagation couplées des champs sonde P et conjugué C s'écrivent en fonction de ces termes [Abrams 1978a, Abrams 1978b, Yariv 1989] :

$$\begin{aligned}\frac{dE_P}{dz} &= n_0 \beta_P E_P + i n_0 \kappa_P^* E_C^* e^{-i|\mathbf{k}_D + \mathbf{k}_F - \mathbf{k}_P| z} \\ \frac{dE_C^*}{dz} &= -n_0 \beta_C^* E_C^* + i n_0 \kappa_C E_P e^{i|\mathbf{k}_D + \mathbf{k}_F - \mathbf{k}_P| z}\end{aligned}\tag{III.10}$$

où z est l'abscisse le long de l'axe de propagation de la sonde, n_0 la densité du nuage, et :

$$\begin{aligned}\beta_P &= i \frac{k_0}{2} \alpha^{(1)}(\omega_P) \\ \kappa_C &= i \frac{k_0}{2} \alpha^{(3)}(\omega_D, \omega_B, -\omega_P) E_D E_B\end{aligned}\tag{III.11}$$

Pour simplifier, on considère uniquement le cas où les deux pompes D et B possèdent des désaccords (par rapport à la résonance atomique) opposés, tandis que la fréquence sonde est librement ajustable. Alors les désaccords sonde et conjugué sont également opposés, et la situation est parfaitement symétrique (figure III.7), de sorte que :

$$\begin{aligned}\beta_C &= \beta_P = \beta \\ \kappa_P &= \kappa_C = \kappa\end{aligned}\tag{III.12}$$

Enfin, on considère des échantillons de petites tailles ($R < 1\text{cm}$) et des désaccords faibles ($|\delta_{P,D,B}| < 10\Gamma$) de sorte que les termes de déphasage $\exp[i|\mathbf{k}_D + \mathbf{k}_F - \mathbf{k}_P| z]$ qui assurent la condition d'accord de phase restent voisins de 1 et peuvent être omis dans les équations de propagation ($|\mathbf{k}_D + \mathbf{k}_F - \mathbf{k}_P| R \ll 2\pi$). Dans ces conditions, les coefficients de réflexion Re et de transmission T de la sonde sont donnés par [Abrams 1978a, Abrams 1978b] :

$$\begin{aligned}Re &= \frac{|\kappa \sin\left(\frac{w}{\sigma_0} \tilde{b}_0\right)|^2}{|w \cos\left(\frac{w}{\sigma_0} \tilde{b}_0\right) + \text{Re}(\beta) \sin\left(\frac{w}{\sigma_0} \tilde{b}_0\right)|^2} \\ T &= \frac{|w|^2}{|w \cos\left(\frac{w}{\sigma_0} \tilde{b}_0\right) + \text{Re}(\beta) \sin\left(\frac{w}{\sigma_0} \tilde{b}_0\right)|^2}\end{aligned}\tag{III.13}$$

avec $w = \sqrt{|\kappa|^2 - \text{Re}(\beta^2)}$. Les coefficients de transmission et réflexion calculés de cette façon sont comparés aux résultats expérimentaux sur la figure III.7. Sans aucun paramètre ajustable, le modèle est là encore en bon accord avec l'expérience.

III.2.3 Gain Raman hyperfin

Le gain Raman peut être obtenu dans un système en configuration Λ , en créant une inversion de population entre les deux niveaux fondamentaux ; il correspond à la réalisation d’une transition entre ces deux niveaux via un processus à deux photons impliquant l’absorption d’un photon pompe et l’émission stimulée d’un second photon à une fréquence différente (figure III.8). En pratique, on utilise au moins un système à quatre niveaux, de façon à pouvoir maintenir l’inversion de population à l’aide d’un faisceau repompeur.

L’observation de processus Raman stimulés dans des liquides organiques ou des cristaux solides a suivi de peu l’apparition des premiers lasers à rubis, qui ont permis d’assurer le pompage optique nécessaire [Eckhardt 1962, Eckhardt 1963]. Le phénomène a été mis en évidence ultérieurement dans les vapeurs atomiques chaudes [Kumar 1985, Bowie 2000], notamment des vapeurs de rubidium, puis les nuages d’atomes froids [Grison 1991, Tabosa 1991]. Bien plus récemment, il a permis d’obtenir un laser en cavité utilisant un atome de césium unique comme milieu amplificateur [McKeever 2003].

Le gain Raman repose sur la cohérence induite par les processus multiphotoniques entre les deux niveaux fondamentaux du système Λ considéré. De nombreux autres phénomènes liés à l’existence de cette forte cohérence interviennent dans ce type de systèmes en interaction avec des lasers pompe et sonde : transparence électromagnétiquement induite¹⁰ (EIT - voir [Fleischhauer 2005] pour une revue sur le sujet), absorption électromagnétiquement induite¹¹ (EIA voir par exemple [Lezama 1999]), gain sans inversion de population [Kilin 2008]. Les figures III.8 et III.9 comparent les résultats d’expériences mettant en évidence ce type de phénomènes aux prédictions de nos modèles de la réponse atomique.

Observation expérimentale

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons au gain Raman “hyperfine” obtenu en créant une inversion de population entre les niveaux hyperfins fondamentaux $F = 2$ et $F = 3$ du rubidium 85. La configuration considérée est présentée sur la figure (figure III.8), ainsi qu’un exemple de courbe de transmission obtenue. On constate que la visibilité des structures étroites est bien moins bonne que dans les cas précédents (gain Mollow et mélange à quatre ondes) ou que pour le gain Raman Zeeman présenté au paragraphe

10. Notamment obtenue en l’absence de repompeur, pour une pompe et une sonde résonantes : les atomes s’accumulent alors dans un état noir, transparent tout à la fois pour la pompe et la sonde.

11. Obtenue par exemple en l’absence de repompeur, pour une pompe et une sonde de même désaccord par rapport à leurs transitions respectives. L’extinction de la sonde est alors grandement accrue par la présence de la pompe.

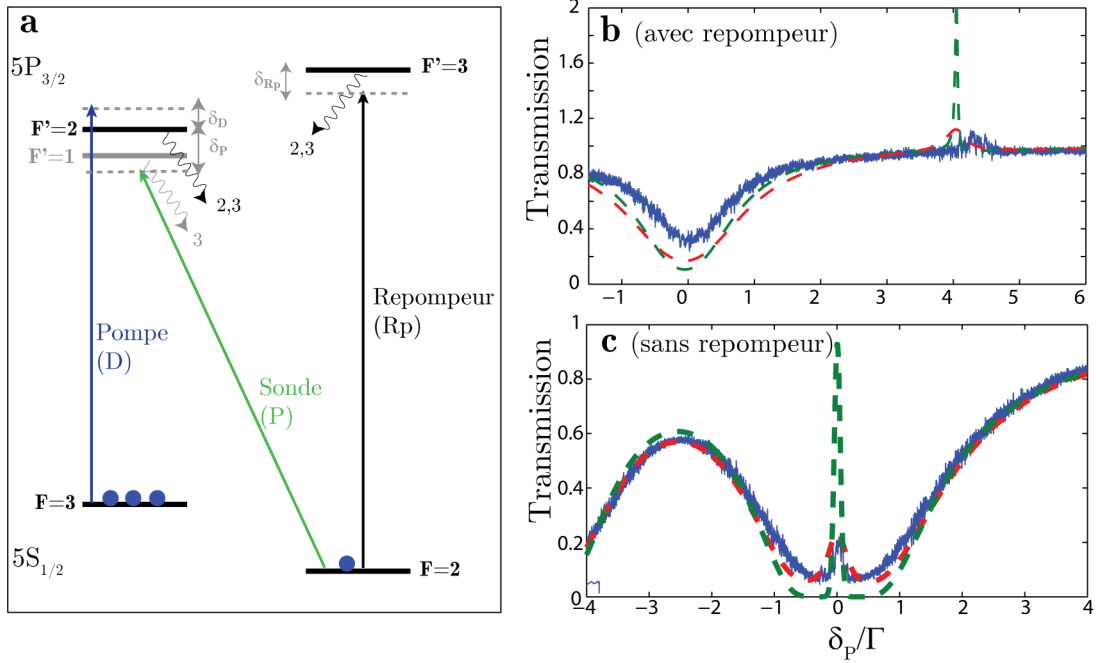


Figure III.8 – Gain Raman hyperfin.

a. Schéma de la configuration considérée. Pour obtenir du gain, un repompeur Rp maintient une inversion de population entre les niveaux métastables $F = 3$ et $F = 2$. La pompe D permet de susciter une transition à deux photons de $F = 3$ vers $F = 2$ et d'obtenir ainsi du gain à la fréquence de la sonde P . Notons que la transition $F = 3 \rightarrow F' = 1$ est interdite.

b. Coefficient de transmission de la sonde en fonction de son désaccord δ_P vis à vis de la transition $F = 2 \rightarrow F' = 2$ du rubidium 85, mesuré dans un nuage d'épaisseur optique $b_0 = 15$ (bleu continu). Deux pompes contrapropageantes d'intensité 8.5 mW/cm^2 chacune sont désaccordées de $+4\Gamma$ par rapport à cette transition. Le repompeur, résonant avec la transition $F = 2 \rightarrow F' = 3$, possède une intensité de 0.22 mW/cm^2 . On constate qu'un modèle ab initio pour un atome à 4 niveaux effectifs (pointillés verts) surestime le gain obtenu. En convoluant la courbe de transmission calculée pour prendre en compte une largeur de 2 MHz pour la sonde, l'accord à l'expérience est meilleur.

c. Coefficient de transmission mesuré cette fois en l'absence de repompeur, et en présence d'une pompe unique résonante avec la transition $F = 2 \rightarrow F' = 2$ (bleu continu); les autres paramètres sont inchangés. Lorsque la sonde est résonante, on constate une hausse de la transmission liée à un phénomène d'EIT. Celui-ci est bien expliqué par un modèle ab-initio (vert pointillé pour des lasers infiniment fins, rouge pointillé pour une sonde de largeur 2 MHz). La chute de la transmission pour les désaccords négatifs de la sonde est liée à la diffusion par la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$; on utilise donc cette fois un modèle à 5 niveaux pour rendre compte de la transmission observée.

suivant. Ici, la prise en compte de la largeur spectrale des lasers pompe et sonde est nécessaire pour rendre compte des observations expérimentales. La raison en est simple : les fréquences de la pompe et de la sonde sont séparées de plus de 3 GHz . Ces deux

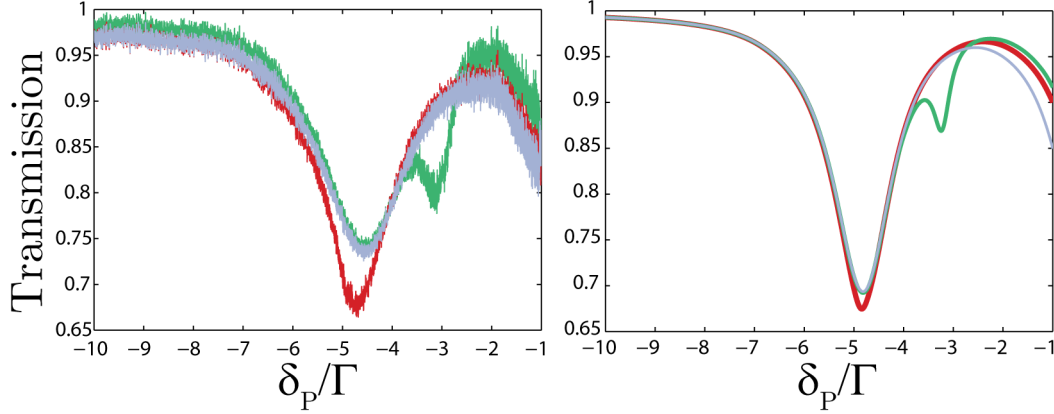


Figure III.9 – **Absorption électromagnétiquement induite**, observée en l'absence de repompeur pour une pompe désaccordée par rapport à la transition $F = 3 \rightarrow F' = 2$. Ici, l'extinction créée par l'EIA s'ajoute à celle liée à la diffusion résonante sur la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$. **A gauche** : Coefficient de transmission de la sonde en fonction de son désaccord δ_P mesuré expérimentalement dans un nuage d'épaisseur optique b_0 voisine de 1, en l'absence de repompeur, et en présence d'une pompe d'intensité $60\text{mW}/\text{cm}^2$, de désaccord 4.7Γ (bleu pâle), -3Γ (vert) ou -4.7Γ (rouge foncé). On constate dans ces deux derniers cas une chute de la transmission lorsque les désaccords de la pompe et de la sonde (par rapport aux transitions qu'elles excitent respectivement) sont égaux, de sorte que la transition à deux photons est résonante. **A droite** : Transmission estimée numériquement dans les mêmes conditions, en prenant en compte une largeur spectrale de la sonde de 2MHz (convolution de la courbe de transmission obtenue pour une sonde spectralement infiniment fine).

faisceaux sont donc issus de sources lasers indépendantes, et ne sont donc plus verrouillés en phase comme cela était le cas pour nos pompes et sondes précédentes, obtenues à partir d'une même source et de dispositifs acousto-optiques. Malgré cela, la courbe de transmission montrée permet de mettre en évidence un léger pic de gain. Notons que les courbes de transmission mesurées sont quasi indépendantes des polarisations des lasers incidents – ce qui est bien sûr spécifique au cas du gain Raman hyperfin considéré.

Le choix des transitions utilisées pour l'observation du gain Raman hyperfin introduit une complexité supplémentaire, liée au faible écart d'énergie entre les niveaux $F' = 1$ et $F' = 2$. La transition $F = 3 \rightarrow F' = 1$ étant interdite, elle ne contribue pas au processus Raman stimulé. En revanche, la présence de la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$ est susceptible d'introduire une diffusion supplémentaire de la sonde. Nous verrons au paragraphe suivant que cette astuce peut permettre de combiner efficacement gain et diffusion et d'abaisser ainsi le seuil du laser aléatoire.

Caractéristiques du modèle.

Un modèle à quatre niveaux (trois en configuration Λ , et un quatrième pour permettre l'ajout d'un repompeur maintenant l'inversion de population nécessaire au gain) permet d'expliquer parfaitement les phénomènes de gain Raman ou d'EIT. C'est ce que met en évidence la figure III.8 b. Comme dans le cas du gain Mollow, on calcule la section efficace d'extinction de la sonde à partir des équations de Bloch optiques à un atome pour obtenir sa transmission. Les équations de Bloch optiques utilisées ici, dérivées dans l'approximation des transitions indépendantes, sont écrites explicitement dans l'annexe B. Notons que leur résolution en régime stationnaire est particulièrement simple, puisqu'elle nécessite simplement l'inversion d'un système linéaire à coefficients constants.

Cependant, dans certains cas et notamment lorsque la sonde présente un désaccord négatif, un modèle à 5 niveaux prenant en compte la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$ est nécessaire pour rendre compte des observations. Cette fois, l'approximation des transitions indépendantes ne peut être utilisée pour simplifier les équations de Bloch optiques (voir annexe B). Le fait de réaliser abusivement cette approximation conduit à des effets aberrants, et notamment à exagérer l'efficacité du processus d'EIA jusqu'à obtenir une section efficace d'extinction supérieure à σ_0 ¹².

III.2.4 Gain Raman Zeeman

Du gain Raman peut également être obtenu avec des atomes de rubidium 85 en créant une inversion de population entre deux sous niveaux Zeeman d'un même niveau hyperfin [Grison 1991, Tabosa 1991]. C'est ce qui est présenté sur la figure III.10. Le gain est obtenu très simplement, en excitant la transition fermée $F = 3 \rightarrow F' = 4$ via un laser pompe unique ; du fait des couplages différents de chaque transition au laser, un phénomène de pompage optique apparaît qui provoque une inversion de population entre certains sous-niveaux, tandis que ces niveaux subissent différents déplacement lumineux en fonction de l'intensité du couplage. Lorsque l'on mesure la transmission d'une sonde de faible intensité, une transition à deux photons "pompe-sonde" entre deux sous-niveaux Zeeman est possible – à condition que la pompe et la sonde possèdent des polarisations croisées de sorte que le moment cinétique puisse être conservé. On peut alors obtenir du gain Raman, lorsque le désaccord pompe-sonde correspond à la différence de déplacement lumineux entre deux sous-niveaux – typiquement quelques MHz. On note par ailleurs la faible largeur spectrale du pic de gain – typiquement 1MHz –, similaire à celle obtenue

12. Dans une telle situation, la puissance rayonnée par l'atome à la fréquence sonde est supérieure à la puissance reçue. Il existe un gain diffus à la fréquence sonde dans un régime où la diffusion est très efficace ; le seuil prédit du laser aléatoire est alors très bas. La prise en compte correcte des termes de relaxation dans les équations de Bloch optiques entraîne la disparition du gain diffus et l'impossibilité de réaliser un laser aléatoire dans une configuration d'EIA.

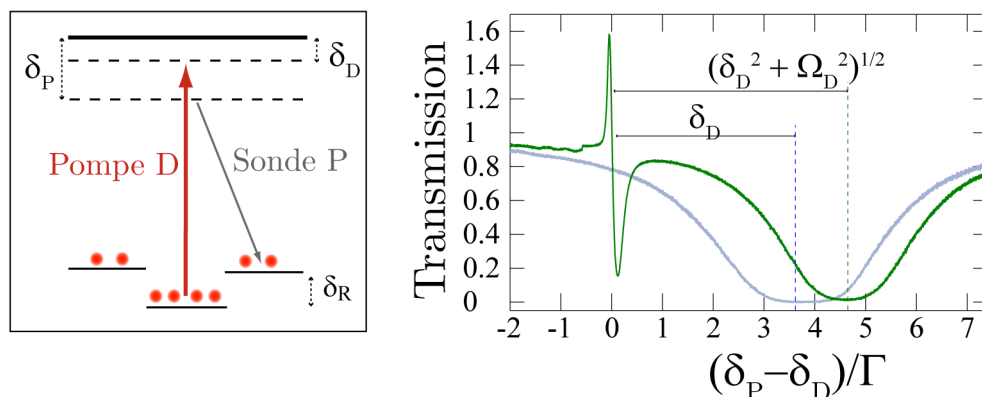


Figure III.10 – **Gain Raman Zeeman. A gauche** : Configuration considérée. Une pompe unique excite la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ du rubidium 85. Elle brise l'équirépartition des populations des sous-niveaux Zeeman, d'une part, créant une inversion de population entre certains d'entre eux ; et elle lève la dégénérescence de ces niveaux par effet de déplacement lumineux d'autre part. Le système peut alors donner lieu à du gain Raman. **A droite** : Courbe de transmission mesurée expérimentalement, en l'absence (bleu clair) et en présence (vert foncé) d'une pompe d'intensité $13\text{mW}/\text{cm}^2$ et de désaccord -3.8Γ . La pompe et la sonde possèdent des polarisations linéaires orthogonales. L'effet de déplacement lumineux de la transition est bien visible, mais surtout le pic de gain Raman ; cette fois, les laser pompe et sonde sont verrouillés en phase, et la structure Raman liée à la transition à deux photons est bien résolue.

dans le cas du gain Raman hyperfin, mais mieux mise en évidence expérimentalement ici.

Le gain Raman Zeeman est l'un des premiers mécanismes de gain que nous avons étudié dans la perspective de la réalisation d'un laser aléatoire, et nous n'avons pas mis en place le même type de modèle ab-initio que pour les autres mécanismes de gain. Nous verrons toutefois au paragraphe suivant qu'il reste possible d'estimer le seuil du laser aléatoire à partir de données expérimentales.

III.3 Conditions d'obtention du laser aléatoire

Dans le paragraphe ci-dessus, nous avons identifié un certain nombre de mécanismes de gain qu'il est possible de mettre en place dans un nuage d'atomes froids. Par ailleurs, dans les chapitres précédents, nous avons mis en place les éléments nous permettant de déterminer si, dans un nuage d'atomes actifs, l'intensité à une fréquence déterminée¹³ est

¹³. Plus précisément, les modèles réalisés nous permettent de considérer une bande de fréquence sur laquelle les sections efficaces de diffusion et de gain de l'atome sont constantes

susceptible de s'emballer via un phénomène de bombe photonique. Voyons maintenant dans quelles conditions un tel emballement est possible dans notre système.

III.3.1 Seuil Letokhov d'un laser aléatoire cohérent à atomes froids

L'épaisseur optique critique nécessaire à l'obtention du laser aléatoire est donnée en fonction des sections efficaces de diffusion et de gain atomiques par la condition I.67 :

$$\begin{aligned} \sigma_g &> 0 \\ \tilde{b}_0 &> \frac{[f - g] + \sqrt{[f - g]^2 + 2gf}}{2} \\ \text{avec } f &= 2\pi \sqrt{\frac{\sigma_0^2}{3\sigma_{\text{sc}}\sigma_g}} \quad \text{et} \quad g = \frac{2\xi\sigma_0}{\sigma_{\text{sc}}} \end{aligned}$$

D'autre part, les sections efficaces de diffusion et d'extinction à une fréquence ω_P fixée s'expriment en fonction de la polarisabilité atomique réduite $\tilde{\alpha}$ par (voir équations II.42 et II.44) :

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{sc}} &= \sigma_0 |\tilde{\alpha}(\omega_P)|^2 \\ \sigma_{\text{ext}} &= \sigma_0 \text{Im}(\tilde{\alpha}) \end{aligned}$$

La section efficace de gain, quant à elle, est proportionnelle à la différence entre la puissance émise à la fréquence d'intérêt et la puissance prélevée sur le faisceau incident, soit :

$$\sigma_g = \sigma_{\text{sc}} - \sigma_{\text{ext}} = (|\tilde{\alpha}(\omega_P)|^2 - \text{Im}[\tilde{\alpha}(\omega_P)]) \quad (\text{III.14})$$

Notons qu'elle peut être positive, et le seuil du laser aléatoire fini, même lorsqu'il n'y a pas de gain vers l'avant ($\sigma_{\text{ext}} > 0$). Il est simplement nécessaire que la puissance émise par l'atome à la fréquence ω_P croisse avec l'intensité incidente à cette fréquence, et ce plus rapidement que la puissance prélevée sur le rayonnement incident. La direction dans laquelle le rayonnement est émis n'importe pas.

Finalement, la condition de seuil est atteinte lorsque l'épaisseur optique à résonance du milieu passif dépasse une valeur critique fonction de la seule polarisabilité atomique ; nous pouvons employer nos méthodes de calcul de cette polarisabilité, présentées au chapitre II, déclinées dans les configurations qui nous intéressent dans l'annexe B, et validées par les expériences pompe-sonde précédentes, pour estimer le seuil du laser aléatoire.

Dans l'approche décrite ci-dessus, nous avons supposé la polarisabilité atomique à une fréquence donnée définie de façon non ambiguë. Dans certaines configurations cependant,

par exemple dans le cas du mélange à quatre ondes, cette polarisabilité dépend des phases relatives des lasers incidents, et varie en fonction de la position de l'atome à des échelles de l'ordre de la longueur d'onde. En revanche, à l'échelle macroscopique, le milieu reste homogène. Le bilan d'énergie d'un atome peut alors être décrit par des sections efficaces moyennées sur la position. **La condition de seuil, obtenue à partir de l'équation I.67, s'écrit ainsi :**

$$\tilde{b}_0 > \frac{[f - g] + \sqrt{[f - g]^2 + 2gf}}{2}$$

(III.15)

$$\text{avec } f = 2\pi \sqrt{\frac{1}{3|\tilde{\alpha}(\omega_P, \mathbf{r})|^2 (|\tilde{\alpha}(\omega_P, \mathbf{r})|^2 - \text{Im}[\tilde{\alpha}(\omega_P, \mathbf{r})])}} \quad \text{et} \quad g = \frac{2\xi}{|\tilde{\alpha}(\omega_P, \mathbf{r})|^2}$$

La barre horizontale au dénominateur de f et g dénote une moyenne spatiale. La polarisabilité atomique peut présenter une dépendance spatiale dans d'autres situations, notamment lorsque les pompes sont fortement atténuées lors de la traversée de l'échantillon. Pour décrire une telle situation, il serait en principe nécessaire de réaliser un modèle de transport couplé du rayonnement à la fréquence pompe et à la fréquence ω_P d'intérêt pour le laser aléatoire. On fera ici l'hypothèse d'un pompage homogène - que l'on discutera à posteriori.

Dans toute cette partie, nous utiliserons des modèles ne tenant pas compte de la dégénérescence des niveaux, de façon à pouvoir calculer simplement la puissance émise par les atomes à la fréquence d'intérêt et utiliser l'expression II.42 de la section efficace de diffusion. Simplement, nous comparerons directement l'épaisseur optique critique obtenue à celle mesurée à résonance dans notre échantillon sur la transition utilisée pour l'obtention du laser aléatoire (tout comme nous avons utilisé un modèle à deux niveaux non dégénérés pour modéliser les expériences pompe-sonde dans le cas du mélange à 4 ondes, voir l'annexe B pour plus de détails).

III.3.2 Application : Gain Mollow, Raman et Mélange à 4 ondes

Gain Mollow

La première estimation de l'épaisseur optique critique nécessaire à l'obtention d'un laser aléatoire à atomes froids a été réalisée dans le cas du gain Mollow [Froufe-Pérez 2009]. Les résultats présentés ici sont similaires à ceux de cet article, mais ont été obtenus en utilisant notre méthode numérique systématique de calcul de la polarisabilité (annexe B). L'épaisseur optique critique obtenue est représentée en fonction des paramètres de

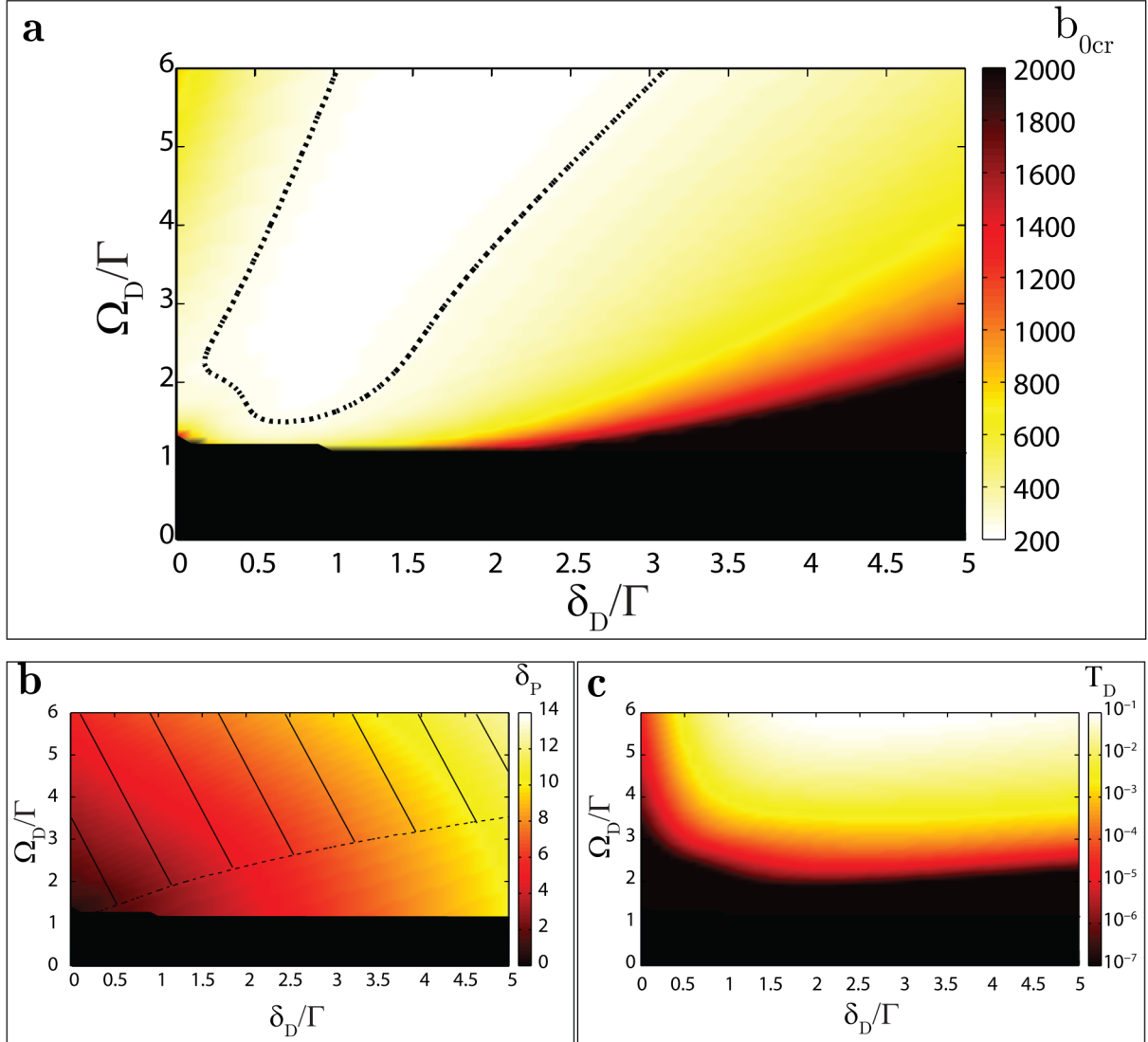


Figure III.11 – Conditions d'obtention d'un laser aléatoire à gain Mollow, estimées numériquement. **a.** Épaisseur optique critique b_{0cr} pour l'obtention du laser aléatoire, donnée par la condition III.15, tracée en fonction du désaccord de la pompe δ_D et de sa pulsation de Rabi Ω_D . La ligne pointillée délimite la zone où $b_{0cr} < 250$. Pour chaque point, on a choisi le désaccord δ_P du laser aléatoire donnant le seuil le plus faible. **b.** Désaccord δ_P optimal du laser aléatoire. La zone hachurée délimite les points de fonctionnement pour lesquels l'épaisseur optique de l'échantillon à la fréquence du laser aléatoire est plus faible que 1, et où la validité du modèle diffusif utilisé pour prédire le seuil peut donc être questionnée. **c.** Transmission de la pompe (échelle log) au seuil du laser aléatoire. On constate que dans la plupart des régimes, l'hypothèse de pompage homogène est caduque.

pompe (désaccord et pulsation de Rabi) sur la figure III.11. On constate qu'une épaisseur optique critique de l'ordre de **200** est obtenue dans une gamme de paramètres assez large, qui correspond à peu près à une zone de pulsation de Rabi effective de la pompe $\Omega'_D = \Omega_D / (1 + 4\delta_D^2 / \Gamma^2)$ constante. A l'heure actuelle, cette épaisseur optique critique est atteinte expérimentalement.

La configuration Mollow présente plusieurs avantages. Tout d'abord, le modèle de physique atomique utilisé est relativement simple, de même que l'implémentation expérimentale de ce mécanisme de gain. Le potentiel signal de laser aléatoire serait désaccordé de quelques Γ par rapport au rayonnement de fluorescence dû à la diffusion élastique des pompes, rendant sa détection directe délicate mais envisageable.

Toutefois, plusieurs éléments limitent fortement la pertinence du modèle proposé :

- Les effets de polarisation ne sont pas pris en compte ; or du gain n'est obtenu que pour une polarisation, celle de la pompe.
- Le laser aléatoire est obtenu pour la plupart des paramètres dans des conditions de faible diffusion, dans lesquelles le modèle diffusif peut perdre sa pertinence. Nous reviendrons sur ce problème en fin de chapitre.
- La fréquence à laquelle le gain est obtenu dépend fortement de l'intensité des pompes, qui introduit un déplacement lumineux des niveaux. Mais les pompes, d'autre part, sont diffusées bien plus efficacement que le potentiel rayonnement du laser aléatoire - elles sont plus proches de résonance - de sorte que **l'hypothèse de pompage homogène est caduque** (voir figure III.11 c).
- L'atténuation des pompes est moindre lorsque leur désaccord et leur puissance sont élevées ; cela correspond malheureusement à une situation de diffusion extrêmement faible pour le signal laser aléatoire.
- Enfin, la réalisation d'une expérience stable est rendue délicate par le caractère destructif des pompes.

Ces facteurs nous ont amenés à rechercher une situation plus favorable à l'observation du laser aléatoire.

Mélange à quatre ondes

L'étude de la configuration de mélange à quatre ondes avait pour objectif de mettre en évidence une situation pouvant donner lieu à un laser aléatoire à atomes froids dans un régime de forte diffusion. Cependant, nous avons vu qu'il n'a pas été possible d'obtenir du gain sur l'axe sonde conjugué dans la configuration étudiée, avec deux pompes de part et d'autre de résonance et une sonde à résonance. Malheureusement, dans cette configuration, **la section efficace de gain** - prenant en compte le gain diffus - calculée via nos modèles **est toujours négative**. C'est ce qu'illustre la figure III.12. La réalisation d'un laser aléatoire dans cette configuration est donc bien entendu impossible.

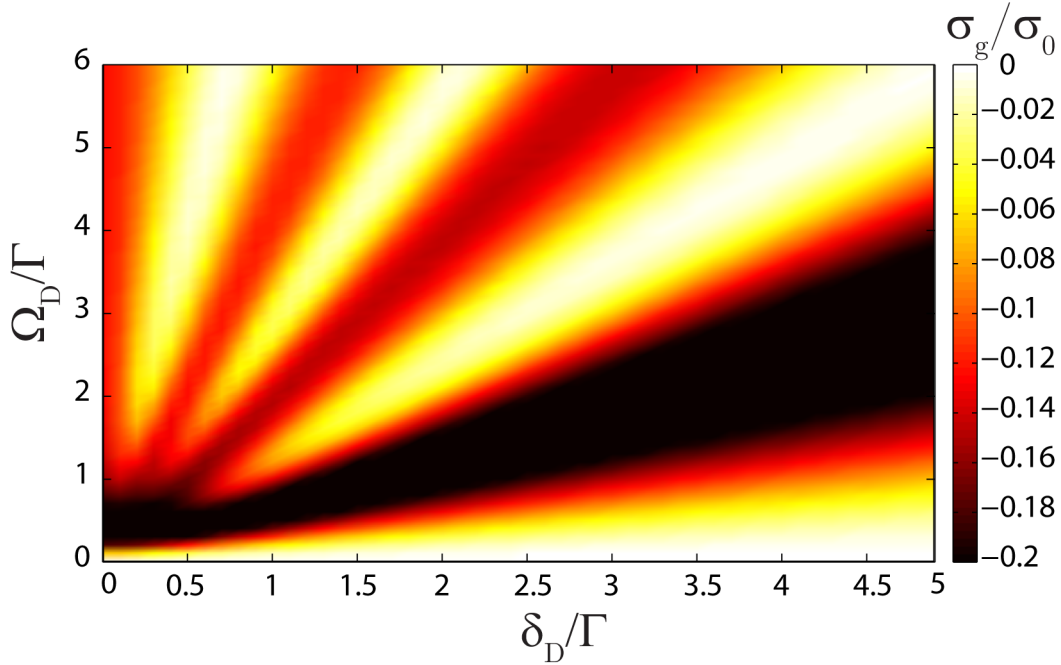


Figure III.12 – **Section efficace de gain σ_g en configuration de mélange à 4 ondes.** Cette section efficace, moyennée sur la position des atomes, a été calculée pour un nuage soumis à deux pompes de mêmes intensités, de désaccords opposés par rapport à la résonance atomique, et pour “une sonde” à résonance. Elle est tracée en fonction du désaccord δ_D et de la pulsation de Rabi Ω_D de l’une des pompes. On constate que la section efficace de gain calculée est toujours négative ; le milieu ne peut donc donner lieu à un laser aléatoire dans cette configuration.

Gain Raman Zeeman

Le mécanisme de gain Raman Zeeman a été l’un des premiers étudiés à l’INLN dans la perspective du laser aléatoire [Guerin 2009], immédiatement après le gain Mollow. Afin d’éviter d’avoir à développer un modèle complexe de la réponse atomique prenant en compte tous les sous-niveaux Zeeman du rubidium, nous avons cherché à estimer le seuil d’un potentiel laser aléatoire à gain Raman à partir des résultats d’expériences de spectroscopie pompe-sonde.

La mesure de la transmission T d’une sonde de fréquence ω_P nous donne accès à la partie imaginaire de la polarisabilité réduite $\tilde{\alpha}(\omega_P)$ puisque :

$$T = \exp[-\tilde{b}_0 \text{Im}[\tilde{\alpha}](\omega_P)] \quad (\text{III.16})$$

Dans le cas du gain Raman, lorsque la pompe D est suffisamment désaccordée par rapport à la résonance atomique, la partie imaginaire de la polarisabilité au voisinage de la fréquence pompe peut être ajustée par une double lorentzienne. Pour un faisceau

de polarisation orthogonale à celle de la pompe :

$$\text{Im}(\tilde{\alpha}_\perp) = \frac{A_1}{(\Delta_P - \delta_R)^2 + \gamma^2/4} - \frac{A_2}{(\Delta_P + \delta_R)^2 + \gamma^2/4} . \quad (\text{III.17})$$

avec $\Delta_P = \omega_P - \omega_D$. δ_R et γ décrivent respectivement l'espacement et la largeur des lorentziennes constituant la courbe de dispersion et sont des paramètres ajustables, de même que les deux amplitudes A_1 et A_2 . L'ajustement des courbes de transmission expérimentales nous permet de déterminer ces paramètres. D'autre part, la partie réelle de la polarisabilité peut être obtenue en utilisant les relations de Kramers-Krönig [Jackson 1998] :

$$\text{Re}(\tilde{\alpha}_\perp) = A_1 \times \frac{-2(\Delta_P - \delta_R)/\gamma}{(\Delta_P - \delta_R)^2 + \gamma^2/4} - A_2 \times \frac{-2(\Delta_P + \delta_R)/\gamma}{(\Delta_P + \delta_R)^2 + \gamma^2/4} . \quad (\text{III.18})$$

De la polarisabilité, on déduit les sections efficaces de gain et de diffusion. Cependant, seules deux des trois composantes de polarisation contribuent au gain et à la diffusion. Pour prendre cela en compte dans l'estimation du seuil du laser aléatoire, il est nécessaire réaliser de réaliser un bilan d'énergie global de l'atome, en moyennant les sections efficaces de gain et de diffusion sur les polarisations :

$$\begin{aligned} \sigma_g/\sigma_0 &= \frac{2}{3} \left(|\tilde{\alpha}_\perp|^2 - \text{Im}[\tilde{\alpha}_\perp] \right) \\ \sigma_{sc}/\sigma_0 &= \frac{2}{3} |\tilde{\alpha}_\perp|^2 \end{aligned} \quad (\text{III.19})$$

Une erreur a été commise à ce sujet dans notre article original [Guerin 2009], puisque nous avons moyenné la polarisabilité atomique et non les sections efficaces, ce qui conduit à un bilan d'énergie erroné. En conséquence, les résultats présentés initialement sous-estiment les sections efficaces de gain et de diffusion, et surestiment l'épaisseur optique critique. Contentons nous de noter ici que celle-ci est inférieure à 200 dans une large gamme de paramètres de pompage.

La gain Raman Zeeman présente des caractéristiques intéressantes pour réaliser un laser aléatoire ; il a notamment un seuil accessible (~ 200), et peut être obtenu dans un régime où la déplétion des pompes est limitée. En revanche, il donnerait lieu comme le gain Mollow à un laser aléatoire dans un régime de faible diffusion. Surtout, **le désaccord de l'ordre du MHz entre le signal laser aléatoire et le rayonnement issu de la diffusion élastique des pompes rendrait toute détection extrêmement délicate.**

Gain Raman Hyperfin : système 4 niveaux

Le gain Raman hyperfin permet de pallier à ce défaut majeur, tout en conservant les avantages du gain Raman Zeeman. La fréquence à laquelle le gain est obtenu est séparée

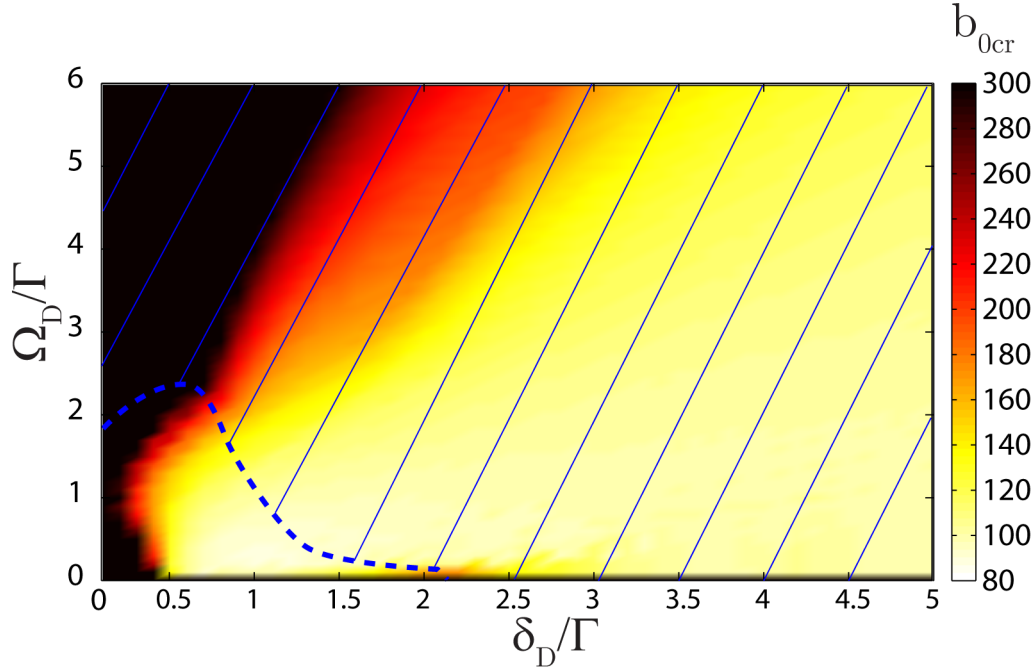


Figure III.13 – **Seuil d'un laser aléatoire à gain Raman hyperfin.** L'épaisseur optique critique calculée dans un modèle 4 niveaux est représentée en fonction du désaccord δ_D et de la pulsation de Rabi Ω_D de la pompe. La pulsation de Rabi et le désaccord du repompeur sont choisis pour obtenir le seuil minimal (Plages testées : $\Omega_{Rp} = 0 - 12\Gamma$, $\delta_{Rp} = 0 - 6\Gamma$), de même que la fréquence du laser aléatoire ($\delta_P = 0 - 7\Gamma$). On constate que, comme dans le cas du gain Raman Zeeman, le seuil est accessible dans une large gamme de paramètres ; au seuil, pour la majorité de ces paramètres, l'épaisseur optique de l'échantillon à la fréquence du laser aléatoire est plus faible que 1 (zone hachurée).

de plus de 60MHz de la fréquence repompeur¹⁴ et de 3GHz de celle des pompes¹⁵. Tout comme pour celui-ci, l'épaisseur optique critique du laser aléatoire est accessible à l'expérience dans une large gamme de paramètres de pompage (figure III.13). Elle vaut **90** à l'optimum dans la configuration d'atomes à 4 niveaux non dégénérés considérés (représentée sur la figure III.8).

Cette fois, on peut contrôler la répartition des populations entre les niveaux en jouant sur les désaccords et intensités de la pompe et du repompeur, ce qui représente 4 paramètres ajustables expérimentalement. La figure III.14 montre qu'une fois les caractéristiques de la pompe fixées, les paramètres repompeur restent ajustables dans une plage assez large. Cela permet d'utiliser une pompe et un repompeur désaccordés par rapport à la résonance atomique, et donc de minimiser leur déplétion. Cependant, comme précédemment,

14. Et cette situation pourrait être très largement améliorée en utilisant un repompeur sur la raie D1 du Rubidium.

15. Qui correspondent à l'écart d'énergie entre les deux niveaux hyperfins fondamentaux.

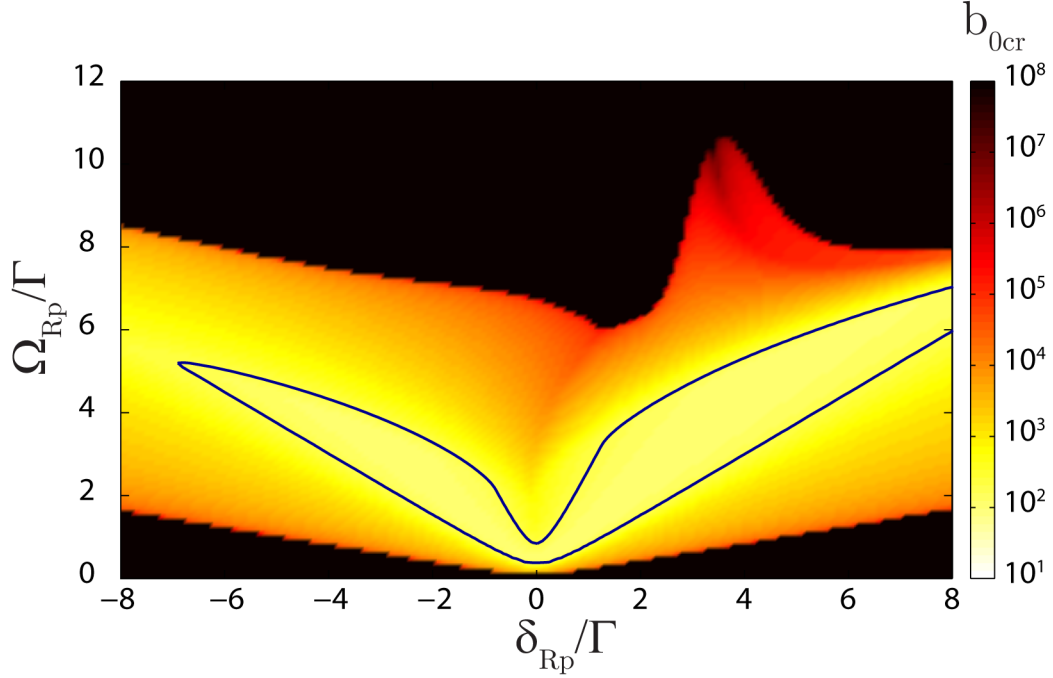


Figure III.14 – **Impact des paramètres repompeur sur le seuil d'un laser aléatoire à gain Raman hyperfin.** L'épaisseur optique critique est tracée en échelle log en fonction du désaccord δ_{Rp} et de la pulsation de Rabi Ω_{Rp} du repompeur, pour des paramètres pompe fixés ($\Omega_D = 3$, $\delta_D = 4$). Pour ces paramètres pompe, l'épaisseur optique critique optimale est de 105. La ligne continue bleue délimite la zone de paramètres où $b_{0cr} < 200$. On constate qu'une large gamme de paramètres repompeur permettent d'obtenir ce résultat.

le laser aléatoire fonctionnerait alors dans un régime de très faible rétroaction diffuse. D'une façon générale, celle-ci est assurée par une transition ouverte. La diffusion crée donc des pertes, et son importance doit rester modérée pour pouvoir obtenir un laser aléatoire.

Gain Raman Hyperfin : système 5 niveaux

En combinant le gain Raman hyperfin obtenu pour un faisceau légèrement désaccordé par rapport à la transition atomique $F = 2 \rightarrow F' = 2$ à la diffusion supplémentaire introduite par la transition fermée $F = 2 \rightarrow F' = 1$, on peut espérer accroître significativement la rétroaction diffuse et donc abaisser le seuil du laser aléatoire. En pratique cependant, on obtient une épaisseur optique critique à peine diminuée par rapport au cas 4 niveaux, voisine de 80 (voir figure III.16). Deux causes au moins peuvent être identifiées pour cela :

- Lorsqu'un laser unique excite deux transitions quasi-dégénérées, on peut obtenir une inhibition de la diffusion par interférence entre les chemins d'excitation possibles

[Cardimona 1982]. Ici, les excitation via $F' = 1$ et $F' = 2$ peuvent donc s'inhiber mutuellement, causant une forte hausse du seuil du laser aléatoire.

- Si la diffusion cohérente parfaitement élastique sur la transition fermée $F = 2 \rightarrow F' = 1$ est favorable à la réalisation d'un laser aléatoire, des processus de diffusion incohérente légèrement inélastique peuvent également avoir lieu, qui dans nos modèles sont considérés comme des pertes.

Nous allons tenter de décrire cette diffusion inélastique dans le paragraphe qui suit.

III.3.3 Limites des modèles de seuil

Outre les approximations explicites effectuées (pompage homogène, niveaux non dégénérés), les modèles présentés possèdent au moins deux limitations significatives que nous allons décrire maintenant.

Validité du modèle diffusif

Les conditions de seuil les plus favorables déterminées jusqu'à présent sont obtenues dans des régimes de faible diffusion, où **les approximations conduisant à l'équation de la diffusion et donc au seuil Letokhov du laser aléatoire sont à priori non valides.**

Nous pouvons tenter d'obtenir une condition de seuil valide dans de tels régimes à partir de l'équation de transfert radiatif. Comme dans le cas diffusif, on cherche à écrire une décomposition modale des solutions de l'ETR, et à déterminer la taille critique du milieu au delà de laquelle l'un des modes présente un taux de décroissance négatif.

Malheureusement, à notre connaissance, cette décomposition modale n'a pas été obtenue en géométrie sphérique. Toutefois, on peut comparer à titre indicatif les prédictions de l'ETR et de l'équation de la diffusion dans un échantillon plan infini. Cette approche a été présentée dans [Froufe-Pérez 2009]. Elle montre l'équivalence complète des conditions de seuil obtenues via l'équation de la diffusion et l'ETR dès lors que l'épaisseur de l'échantillon dépasse le libre parcours moyen, limite en deçà de laquelle une condition de seuil ne peut être obtenue simplement à partir de la décomposition modale de l'ETR. Il n'est donc pas aberrant de supposer la condition de seuil Letokhov pertinente, y compris dans des situations de faible diffusion.

Une seconde limite tient à l'utilisation de modèles de transfert radiatifs incohérents (l'équation de la diffusion ou l'ETR) pour décrire un phénomène à priori profondément cohérent. Le seuil du laser aléatoire, dans une configuration microscopique fixée, est probablement déterminé par les caractéristiques des modes cohérents

du champ - ceux-là mêmes qui sont invoqués pour expliquer son spectre d'émission ou sa statistique de photons. La compréhension de l'impact de cette structure modale du champ constitue précisément l'un des enjeux de l'étude du laser aléatoire [Türeci 2008] ; notons simplement que les premières comparaisons du seuil, obtenu via des approches de type “dipôles couplés” d'une part, et via le modèle Letokhov d'autre part, semblent indiquer que ce dernier surestime la taille critique nécessaire à l'obtention du laser aléatoire [Goetschy 2011]. En quelque sorte, les modes cohérents du champ dans le milieu peuvent donner lieu à des fuites vers l'extérieur moindres que le mode fondamental de l'équation de la diffusion. Notons toutefois que les ordres de grandeur du seuil obtenus via les deux méthodes restent similaires.

Enfin, nous avons négligé l'impact de l'agitation thermique des atomes et de l'effet Doppler. Le chapitre V montre que celui-ci peut parfois avoir une influence dramatique sur les modèles de transport. Dans nos MOT de rubidium, cependant, plusieurs dizaines voire centaines de diffusions sont nécessaires pour que la fréquence d'un photon soit décalée d'une valeur comparable à largeur des lasers que nous utilisons V.14. Dans les régimes de faible diffusion étudiés, négliger l'effet Doppler a donc tout son sens.

Impact de l'émission incohérente

Dans tous les raisonnements ci-dessus, nous avons cherché à identifier des situations dans lesquelles l'intensité à une fréquence fixée, déterminée avec une précision “infinie”, est susceptible de s'emballer. De ce fait, nous avons considéré uniquement l'émission atomique cohérente, seule susceptible de décrire les processus d'émission stimulée et de diffusion parfaitement élastique.

Cependant, lorsque les atomes sont pompés, une part significative, sinon majoritaire, de l'émission est incohérente, et ne peut être décrite par la seule connaissance des dipôles atomiques moyens. Cela a plusieurs conséquences significatives :

- L'émission incohérente peut dans certaines conditions posséder un **spectre extrêmement étroit** et une longueur de cohérence bien supérieure à la taille de l'échantillon (voir figure III.15). Jusqu'à présent, nous avons considéré tous les processus de diffusion transformant un photon incident en “un photon incohérent” comme des pertes. C'est notamment pour cette raison que tous les régimes de lasers aléatoires possibles ont été mis en évidence en situation de (très) faible diffusion. En ce sens, il est très restrictif - mais bien plus simple - de se cantonner à la recherche d'un laser aléatoire basé sur la diffusion purement cohérente.
- Par ailleurs, pompés, les atomes se comportent comme des **sources** (incohérentes) à de nombreuses fréquences. Nous n'avons pas pris en compte ce rayonnement “source” jusqu'à présent puisqu'il ne contribue pas au bilan de puissance dans une bande spectrale arbitrairement étroite. Cependant, dans un échantillon de grande taille, le rayonne-

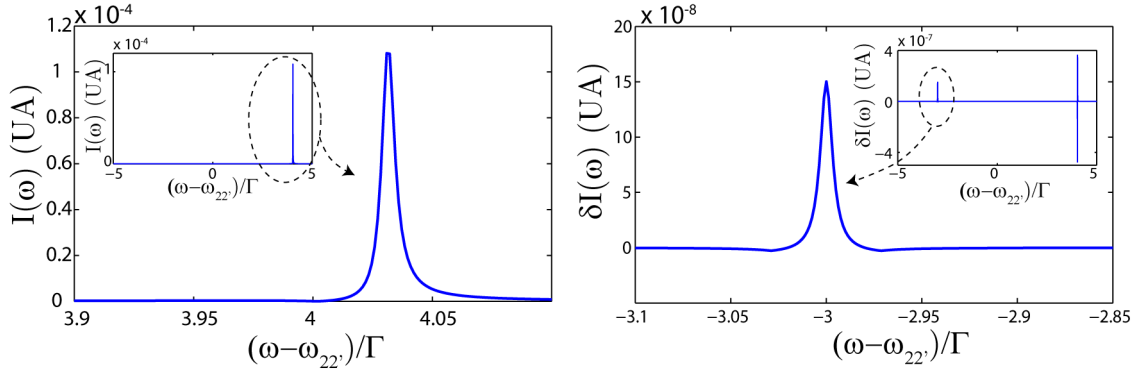


Figure III.15 – Spectre de la diffusion incohérente “quasi-élastique” en configuration de gain Raman hyperfin (atome à 4 niveaux), obtenu numériquement selon la méthode présentée au II.3.2. **A gauche** : Spectre rayonné au voisinage de la fréquence propre $\omega_{22'}$ de la transition $F = 2 \rightarrow F' = 2$, en présence d’une pompe et d’un repompeur seulement. **A droite** : Intensité supplémentaire δI émise lors de l’addition d’une sonde faible (Pulsation de Rabi $\Omega_P = 0.02$, désaccord $\delta_P = -3\Gamma$). Si l’addition de la sonde modifie légèrement la répartition spectrale de la lumière pompe diffusée inélastiquement, on constate surtout qu’une fraction importante de la lumière de la sonde est diffusée de façon quasi-élastique, bien qu’incohérente. La largeur $\Delta\omega$ de ce spectre est de l’ordre de 0.02Γ , de sorte que la longueur de cohérence de la lumière diffusée $l_{\text{coh}} = 2\pi c/\Delta\omega$ dépasse 50m, soit plus de 500 fois le rayon de l’échantillon. La configuration des niveaux considérée est celle de la figure III.8. Paramètres pompe : pulsation de Rabi $\Omega_D = 1.5\Gamma$, désaccord $\delta_D = 4\Gamma$. Paramètres repompeur : pulsation de Rabi $\Omega_{Rp} = 1.3\Gamma$, $\delta_{Rp} = -4\Gamma$.

ment provenant des sources que constituent ses voisins est susceptible d’influencer la réponse d’un atome.

- Notamment, s’il s’agit d’un rayonnement à une fréquence proche de celle du laser aléatoire attendu, il peut tout simplement saturer le gain avant même que la condition de seuil ne soit atteinte ; il peut également être faussement interprété comme un signal de laser aléatoire.

III.3.4 Gain Raman Hyperfin : Laser aléatoire incohérent à 5 niveaux

Forts des constats précédents, nous pouvons imaginer l’existence d’un laser aléatoire dont la rétroaction serait totalement ou partiellement assurée par des processus de diffusion incohérente. Notamment, dans la configuration de gain Raman hyperfin où le spectre de l’émission incohérente est particulièrement étroit, nous pouvons supposer que l’ensemble de la lumière diffusée de façon “quasi-élastique”, au voisinage de la fréquence de la transition considérée, contribue au laser aléatoire. Dans cette hypothèse optimiste, la diffusion n’introduit que peu ou pas de pertes ; un laser aléatoire en régime fortement

diffusif est alors possible, en particulier dans le régime où la transition additionnelle $F = 2 \rightarrow F' = 1$ introduit une diffusion supplémentaire sur une transition fermée à des désaccords où du gain est par ailleurs obtenu via la transition Raman (voir figure III.8).

Afin de calculer le seuil du laser aléatoire dans ces conditions, il nous faut déterminer à nouveau des sections efficaces d'extinction et de diffusion. La première est obtenue comme précédemment. La seconde, en revanche, peut être estimée de plusieurs manières :

A. En ajoutant à la section efficace de diffusion élastique calculée dans un modèle quatre niveaux $\sigma_{\text{sc},4}$ la contribution supplémentaire due à la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$ calculée dans l'hypothèse de transitions indépendantes sans processus multiphotoniques :

$$\sigma_{\text{sc},5}(\omega_P) = \sigma_{\text{sc},4}(\omega_P) + \langle \tilde{S}_{22} \rangle \frac{\sigma_0}{1 + 4 \frac{(\omega_P - \omega_{21'})^2}{\Gamma^2}} \quad (\text{III.20})$$

B. En résolvant les équations de Bloch optiques **dans l'approximation des transitions indépendantes**, puis en utilisant l'expression II.83 de la section efficace de diffusion au voisinage des transitions $F = 2 \rightarrow F' = 1$ et $F = 2 \rightarrow F' = 2$.

C. En résolvant les équations de Bloch optiques plus complètes utilisées dans nos calculs de transmission, et données dans l'annexe B. La section efficace de diffusion, calculée selon la démarche présentée au paragraphe II.3.2 mais sans l'approximation des transitions indépendantes, devient alors :

$$\sigma_{\text{sc},5}(\omega_P) = \frac{\sigma_0}{\Omega} \left[\left(\Gamma_{22'} \langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle + \Gamma_{21'} \langle \tilde{S}_{1'1'} \rangle - 2\sqrt{\Gamma_{22'}\Gamma_{21'}} \text{Re}[\langle \tilde{S}_{2'1'} \rangle] \right)_{\Omega_P=\Omega} - \left(\Gamma_{22'} \langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle + \Gamma_{21'} \langle \tilde{S}_{1'1'} \rangle - 2\sqrt{\Gamma_{22'}\Gamma_{21'}} \text{Re}[\langle \tilde{S}_{2'1'} \rangle] \right)_{\Omega_P=0} \right] \quad (\text{III.21})$$

On peut toutefois s'interroger sur la pertinence de ce modèle où les cohérences atomiques jouent un rôle primordial dans l'expression de la puissance diffusée ; en pratique, l'atome est en effet excité par un rayonnement légèrement incohérent, que l'on assimile à un champ totalement cohérent pour décrire l'excitation atomique.

L'épaisseur optique critique obtenue dans chacun des trois modèles, pour des paramètres repompeurs fixés, est représentée sur la figure III.16. **Dès lors que les photons incohérents, faiblement décalés en fréquence lors d'un processus de diffusion, ne sont plus considérés comme les pertes, le piégeage radiatif au voisinage de la transition fermée $F = 2 \rightarrow F' = 1$ permet d'abaisser considérablement le seuil du laser aléatoire.** Dans les trois modèles considérés, l'épaisseur critique obtenue vaut ainsi quelques dizaines. Notons toutefois que, dans le modèle C, les processus d'interférence quantique déjà mentionnés inhibent l'efficacité de la diffusion au voisinage de la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$ – tout comme dans le modèle cohérent – et tendent à faire croître l'épaisseur optique critique. Malgré cela, cette configuration semble la meilleure de celles étudiées pour l'obtention du laser aléatoire.

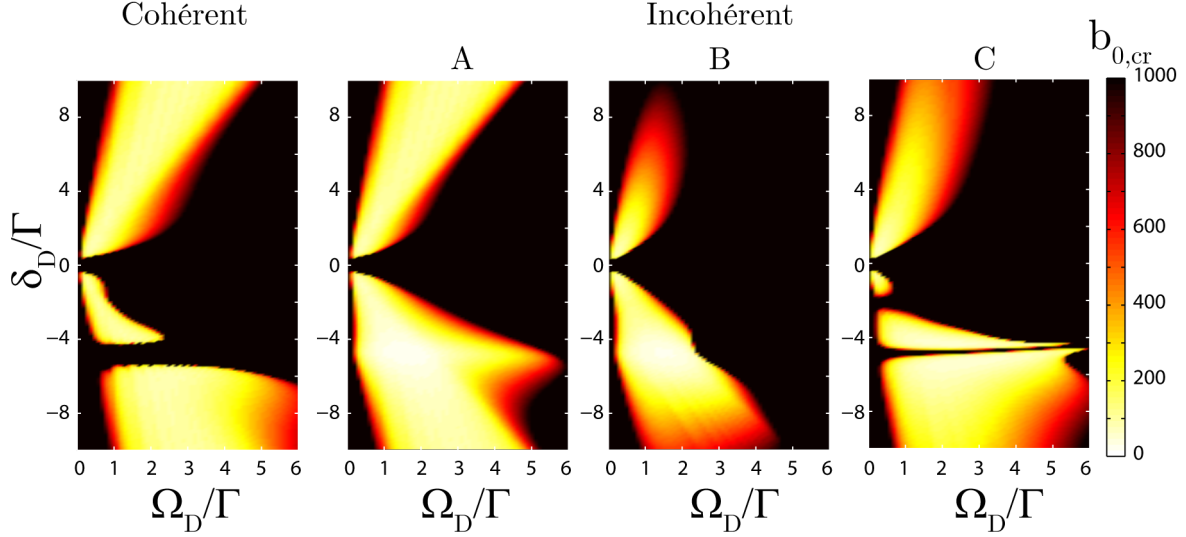


Figure III.16 – Épaisseur optique critique $b_{0,cr}$ d'un laser aléatoire à gain Raman hyperfin, dans un système à 5 niveaux, en fonction de la pulsation de Rabi de la pompe Ω_D , et de son désaccord δ_D par rapport à la transition $F = 2 \rightarrow F' = 2$. **A gauche** : Seuil d'un laser aléatoire parfaitement cohérent, calculé à partir de l'équation III.15. **A droite** : Seuil d'un laser aléatoire incohérent, calculé via les modèles A (à gauche), B (au centre) et C (à droite). Les paramètres repompeur sont fixés : $\delta_{Rp} = 0$, $\Omega_{Rp} = 0.2$. On rappelle que les niveaux $F' = 1$ et $F' = 2$ sont séparés d'une fréquence $\omega_{1'2'} = 4.8\Gamma$. On constate que, dès lors que l'ensemble de l'émission incohérente autour d'une transition est comptabilisée comme participant du laser aléatoire, l'épaisseur optique critique peut descendre jusqu'à des valeurs allant de 20 (modèles A et B) à 50 (modèle C).

III.4 Conclusion

Nous avons décrit dans ce chapitre le dispositif nous permettant de créer et de caractériser un échantillon de quelques 10^{10} atomes de rubidium à des températures de l'ordre de la centaine de μK , et d'épaisseurs optiques variant de l'unité à environ 300. Des expériences de spectroscopie pompe-sonde dans un tel nuage nous ont permis de mettre en évidence des mécanismes de gain et d'excitation paramétrique d'un milieu non linéaire, et de tester ainsi les modèles de la réponse atomique développés au chapitre II. Globalement, ces modèles *ab initio* de la réponse atomique cohérente permettent de très bien décrire nos expériences de spectroscopie.

Nous avons ensuite exploré théoriquement la possibilité d'utiliser les mécanismes de gain mis en évidence pour réaliser un laser aléatoire à atomes froids. À partir de la condition de seuil Letokhov et des sections efficaces de gain et de diffusion données par les équations de Bloch optiques, nous avons ainsi calculé l'épaisseur optique critique nécessaire

à l'obtention d'un laser aléatoire basé sur la diffusion cohérente, ou partiellement incohérente, pour chacun des mécanismes de gain mis en évidence précédemment. Pour la plupart des mécanismes de gain, **les seuils obtenus sont accessibles expérimentalement ; le réalisme des modèles est cependant parfois discutable**. Le tableau [III.1](#) résume les principaux résultats obtenus pour les différentes configurations possibles.

Parmi les configurations étudiées, **le gain Raman hyperfin semble le meilleur candidat** pour l'obtention du laser aléatoire. Outre un seuil bas, il permet d'obtenir une séparation spectrale entre l'éventuel signal de laser aléatoire et le rayonnement des faisceaux incidents diffusé de façon élastique importante, ce qui ne peut que faciliter la détection de ce signal. L'objectif du chapitre suivant est de décrire et de tenter d'interpréter les observations réalisées à l'aide de nos différents dispositifs de caractérisation – mesure de la fluorescence totale, des populations atomiques, et du spectre de la lumière diffusée – dans les conditions où est attendue l'apparition d'un laser aléatoire à gain Raman hyperfin.

| Mécanisme de gain | $b_{0,cr}$ | Avantages | Inconvénients |
|--|------------------------|---|---|
| Mollow | 200 | <ul style="list-style-type: none"> – Modèle et implémentation simples – Désaccord pompe-signal de quelques dizaines de MHz | <ul style="list-style-type: none"> – Atténuation des pompes dramatique non prise en compte – Polarisation non incluse dans le modèle – Pompes destructives – (Régime faiblement diffusif) |
| Mélange 4 ondes | ∞ | <ul style="list-style-type: none"> – Forte diffusion | <ul style="list-style-type: none"> – Pas de gain |
| Raman Zeeman | ~ 200 | <ul style="list-style-type: none"> – Polarisation incluse dans le modèle – Peu sensible à la déplétion des pompes | <ul style="list-style-type: none"> – Désaccord pompes - signal très faible ($\sim 1\text{MHz}$) – (Très faible diffusion) |
| Raman Hyperfin (4 niveaux) | ~ 90 | <ul style="list-style-type: none"> – Large désaccord pompe - signal – Gain obtenu pour toutes polarisations – Peu sensible à la déplétion des pompes | <ul style="list-style-type: none"> – (Très faible diffusion) |
| Raman Hyperfin (5 niveaux, incohérent) | 20 – 50 (selon modèle) | <ul style="list-style-type: none"> – Large désaccord pompe - signal – Régime de forte diffusion – Déplétion pompe négligeable – Caractérisable par des mesures de spectres basse résolution ? | <ul style="list-style-type: none"> – Validité du modèle difficile à tester. – Un atome isolé émet un rayonnement similaire à celui du “laser aléatoire” incohérent. Ce rayonnement peut saturer le gain et supprimer l’existence d’un seuil marqué. |

Table III.1 – Pertinence des différents mécanismes de gain étudiés pour la réalisation d’un laser aléatoire.

Piégeage radiatif dans un nuage actif d'atomes froids

Au chapitre précédent, nous avons établi les conditions nécessaires à l'obtention d'un laser aléatoire dans un nuage d'atomes froids. Nous avons montré, par ailleurs, que **nous pouvons obtenir expérimentalement des échantillons qui, selon nos modèles, doivent permettre l'observation du laser aléatoire**. Dans le cas d'un laser aléatoire basé sur le gain Raman hyperfin à 5 niveaux, la réalisation d'un tel échantillon est même à la portée de la plupart des expériences de refroidissement de rubidium. **Il nous reste maintenant à caractériser ce régime expérimentalement**. Ainsi, dans tout ce chapitre, nous étudierons un nuage de rubidium 85 pompé en configuration de gain Raman hyperfin.

Cependant, quel signal observer pour mettre en évidence l'existence d'un laser aléatoire ? La plupart des caractérisations usuelles du phénomène nécessitent de contrôler l'efficacité du gain indépendamment des autres paramètres décrivant le milieu, mais aussi de pouvoir réaliser des spectres de la lumière émise par l'échantillon dont la résolution permet de distinguer émission spontanée et émission laser [Gouedard 1993, Cao 2000, Cao 2003]. Aucune de ces deux exigences ne peut être satisfaite dans notre système – du moins à l'heure actuelle.

Dans un premier temps, **nous avons simplement mesuré l'évolution de l'intensité totale du rayonnement de fluorescence du milieu soumis à un pompage externe en fonction de l'épaisseur optique**, à nombre d'atomes quasi constant. Il n'est pas évident que l'intensité totale émise soit influencée par l'apparition d'un laser aléatoire : une émission supplémentaire à une fréquence peut être compensée par un déficit à une autre. En régime permanent, la puissance totale émise par l'échantillon est égale à la puissance prélevée sur les faisceaux externes, seules sources d'énergie. La question est de savoir si les sections efficaces d'extinction des atomes sont influencées par le rayonnement émis par leurs voisins. Ce peut être le cas que cette lumière soit celle d'un laser aléatoire ou qu'elle corresponde simplement à un rayonnement d'émission spontanée piégé au sein du nuage par la diffusion.

Au delà de son intérêt pour l'étude du laser aléatoire, notre échantillon constitue de fait un système modèle pour l'étude du piégeage radiatif par des atomes multi-niveaux. Il permet d'explorer expérimentalement le régime où les populations atomiques sont déterminées par le rayonnement et non maintenues dans une distribution thermique par les collisions – régime dit hors équilibre thermodynamique local, dont la bonne modélisation constitue un enjeu important dans le domaine de l'astrophysique [Magnan 1994, Lopez-Puertas 2001].

Ce chapitre commence par une description des résultats de nos mesures – montrant notamment l'évolution de l'intensité du rayonnement de fluorescence avec l'épaisseur optique. Il propose ensuite un modèle simple permettant de décrire le piégeage radiatif du rayonnement large bande issu de l'émission spontanée, et d'expliquer une partie de nos observations. Enfin, il discute la possible interprétation des signatures additionnelles observées en termes de laser aléatoire.

IV.1 Comportements collectifs d'émission

IV.1.1 Mise en évidence expérimentale

Afin de pouvoir détecter un éventuel changement de comportement lié au passage du seuil du laser aléatoire, on mesure l'intensité totale du rayonnement de fluorescence (intensité collectée dans un large angle solide, voir III.1.2) pour différentes épaisseurs optiques b_0 . Bien sûr, l'intensité mesurée dépend avant tout du nombre d'atomes dans l'échantillon. On fait donc varier l'épaisseur optique tout en tâchant de conserver constant ce nombre d'atomes, en ajustant la durée de la phase de piège noir entre 0 et 50ms (voir paragraphe III.1.1). Dans une moindre mesure, il est également possible de diluer l'échantillon en le laissant libre de s'étendre (vol balistique), mais le temps d'expansion est limité par la chute des atomes due à la gravité. Pour chaque mesure, on contrôle par ailleurs le nombre d'atomes dans l'échantillon et l'épaisseur optique par une image d'absorption, réalisée après la mesure de la fluorescence.

Les figures IV.1 et IV.2 montrent l'intensité du rayonnement de fluorescence mesurée en fonction du désaccord de la pompe, pour deux intensités pompes différentes et pour plusieurs épaisseurs optiques. Afin de garder cette intensité de la pompe constante durant la mesure, on joue à l'aide d'un dispositif acousto-optique sur la fréquence d'un faisceau maître, qui subit ensuite deux étapes d'amplification. La saturation du gain dans les systèmes amplificateurs supprime efficacement les fluctuations d'intensité introduites par le dispositif acousto-optique. On évite ainsi toute opération de normalisation des mesures, périlleuse en régime fortement non linéaire.

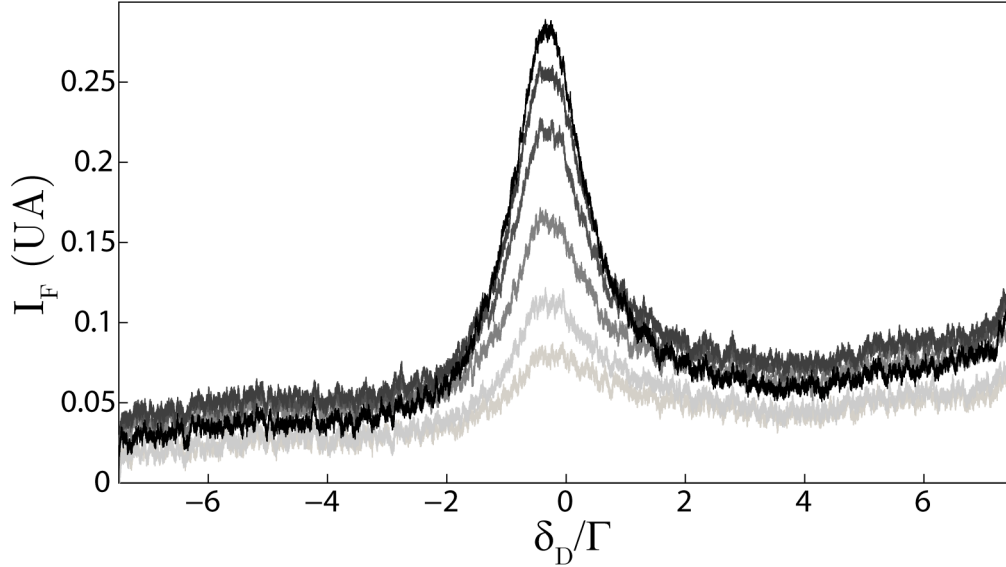


Figure IV.1 – Intensité I_F du rayonnement de fluorescence mesurée en configuration Raman hyperfin, pour différentes épaisseurs optiques : du plus clair au plus foncé, $b_0 = 23, 33, 41, 53, 62$ et 73 . Le nombre d'atomes, estimé par imagerie d'absorption, reste compris pour chaque échantillon entre $1.1 \cdot 10^9$ et $1.3 \cdot 10^9$. Un accroissement avec l'épaisseur optique de l'intensité du rayonnement de fluorescence émis lorsque les pompes sont résonantes est clairement mis en évidence.

L'échantillon est éclairé par une pompe et un repompeur. La première est divisée en 2 faisceaux contrapropageants, d'intensité $I_D = 1.88 \text{ mW/cm}^2$ chacun. Le repompeur, réparti en six faisceaux d'intensité $I_{Rp} = 0.48 \text{ mW/cm}^2$ chacun, est désaccordé de $\delta_{Rp} = -4\Gamma$ par rapport à la transition $F = 2 \rightarrow F' = 3$ (voir figure III.8 pour un schéma des niveaux). Une mesure de fluorescence est réalisée en balayant la fréquence pompe de -7 à 7Γ en 1 ms . Nous avons vérifié qu'en divisant ou multipliant par 2 la durée de ce balayage, les mesures obtenues ne sont pas modifiées ; cela semble indiquer d'une part que l'on mesure bien en chaque point la réponse stationnaire du système ; que les pompes ne sont pas exagérément destructives, d'autre part.

Notons en revanche que la mesure du niveau de référence de l'intensité de fluorescence I_F est délicate. En effet, en l'absence d'échantillon, une partie de la lumière pompe est diffusée par les parois de notre cellule à vide et le rubidium à température ambiante présent dans la cellule, et parvient directement jusqu'au détecteur. En présence d'un MOT, la densité de gaz chaud dans la cellule peut être modifiée, et l'intensité du faisceau pompe qui parvient aux parois de la cellule en verre après traversée du nuage également. L'offset mesuré en l'absence d'échantillon est donc entaché d'une erreur, que l'on minimise en assurant via des diaphragmes la sélectivité spatiale du dispositif de mesure de I_F , mais aussi en abaissant si possible la densité de vapeur de rubidium chaude dans la cellule à vide. En particulier, les mesures présentées sur la figure IV.2 sont réalisées pour des épaisseurs optiques plus faibles que celles de la figure IV.1, et ont été obtenues

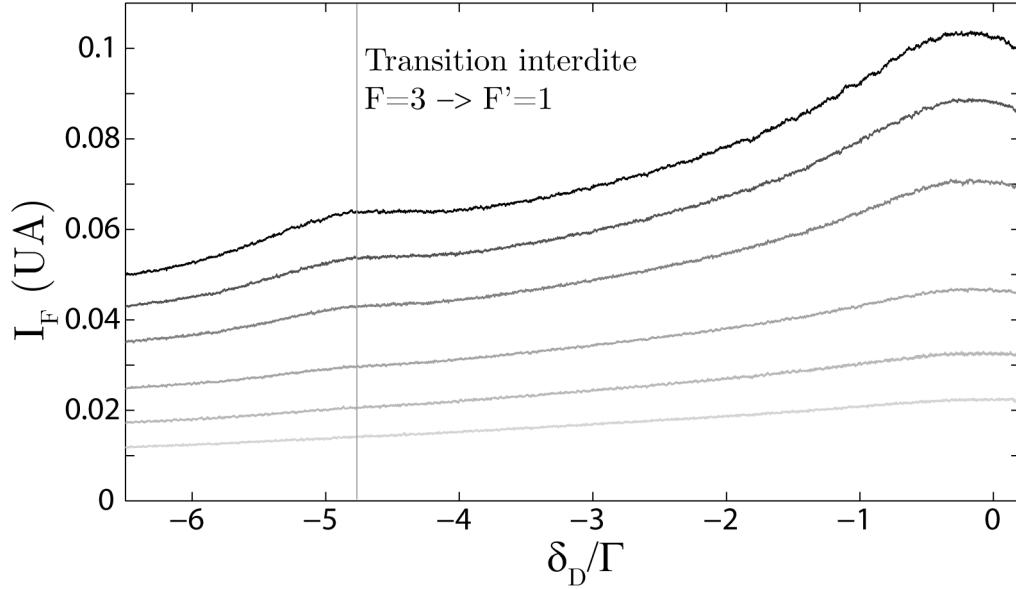


Figure IV.2 – Intensité I_F du rayonnement de fluorescence, mesurée dans des conditions similaires à celles de la figure IV.1, mais pour une intensité pompe et un désaccord repompeur accrus : $I_D = 8.5 \text{ mW/cm}^2$, $\delta_{Rp} = -5\Gamma$. L'épaisseur optique vaut, du plus clair au plus foncé : $b_0 = 1.9, 4.3, 6.6, 9.7, 20$ et 27 , tandis que le nombre d'atomes vaut $6.9 \cdot 10^8 \pm 12\%$. Cette fois, on constate que la fluorescence émise augmente aussi pour une pompe désaccordée par rapport à la transition $F = 3 \rightarrow F' = 2$. Surtout, elle présente aux épaisseurs optiques les plus élevées un pic pour une pompe résonante avec la transition interdite $F = 3 \rightarrow F' = 1$.

en chargeant notre piège magnéto-optique à partir d'une vapeur moins dense.

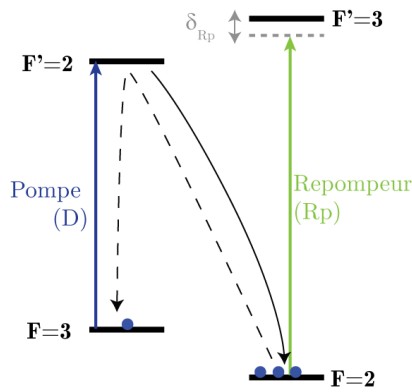
Malgré cette limitation, une croissance de l'intensité mesurée avec l'épaisseur optique est bien mise en évidence dans plusieurs régimes. Commençons par noter que cela va à l'encontre de deux effets intuitifs :

- Lorsque l'épaisseur optique croît, les atomes situés au centre du nuage sont placés dans l'ombre des atomes en surface. L'intensité du rayonnement qu'ils reçoivent est donc diminuée, et probablement, celle du rayonnement qu'ils émettent également.
- On joue sur l'épaisseur optique en comprimant un nuage initial de taille et de nombre d'atomes fixés. Du fait des pertes durant cette phase de compression, le nombre d'atomes dans le nuage tend donc à diminuer légèrement lorsque b_0 croît, ce qui ne peut qu'affaiblir le rayonnement de fluorescence.

Par ailleurs, cet accroissement du rayonnement de fluorescence représente un effet dominant lorsque la pompe est à résonance avec la transition $F = 3 \rightarrow F' = 2$, une configuration où aucun de nos modèles ne prédit la possible existence d'un laser aléatoire. Pour une pompe d'intensité modérée (figure IV.1), l'intensité du pic central de fluorescence est ainsi multipliée par 3.6 lorsque l'épaisseur optique passe de 23 à 80 !

IV.1.2 Impact du piégeage radiatif sur le rayonnement de fluorescence : modèle simple

Il est possible de donner une explication qualitative relativement simple, en termes de piégeage radiatif, à la croissance avec l'épaisseur optique de l'intensité de fluorescence observée lorsque la pompe est résonante.



Le schéma ci-contre illustre le phénomène. Lorsque la pompe est résonante, elle assure un pompage optique beaucoup plus efficace que le repompeur, désaccordé par rapport à la transition qu'il excite et d'intensité relativement faible. L'essentiel des populations atomiques est donc dans $F = 2$. Lorsque, occasionnellement, un photon repompeur est diffusé, le niveau $F=3$ peut être peuplé temporairement. L'atome concerné diffuse alors quelques photons pompe, et génère de la fluorescence, avant de retomber dans $F=2$ en émettant un photon de fréquence $\omega_{22'}$. Cependant, dans un nuage d'épaisseur

optique importante, ce photon peut à son tour exciter un atome voisin, et repeupler ainsi l'état $F=3$. A nouveau, cet atome peut diffuser la lumière pompe et contribuer au rayonnement de fluorescence.

Finalement, à forte épaisseur optique, les photons diffusés au voisinage de la fréquence $\omega_{22'}$ contribuent à repomper les atomes voisins ; c'est un effet collectif qui augmente la population dans $F = 3$, et accroît la diffusion subie par la pompe.

IV.2 Modèle couplé du transport radiatif et de la réponse atomique

IV.2.1 Hypothèses d'un modèle de piégeage incohérent

Afin de valider cette idée simple, et de mieux cerner l'impact du piégeage radiatif sur les signaux de photodétection, nous avons réalisé un modèle visant à rendre compte du comportement d'un nuage de N atomes soumis à un pompage externe, dans la limite des faibles densités et en régime stationnaire. Pour cela, on cherche à coupler des équations décrivant la réponse d'un atome à 4 niveaux, telles que les équations de Bloch optiques, à une équation de transport du rayonnement telle que l'équation de la diffusion. Notons que cette approche néglige bien sûr l'impact du caractère ondulatoire de la lumière sur le transport, ainsi que les effets de diffusion coopérative [Bienaimé 2010] – les atomes

sont ici considérés comme des dipôles indépendants.

A priori, chaque transition peut donner lieu à du piégeage radiatif. On simplifie grandement le problème en effectuant les hypothèses suivantes :

- On néglige l'atténuation des faisceaux pompe et repompeur, de même que l'impact sur la réponse atomique de l'intensité diffuse aux fréquences correspondantes. En bref, les atomes sont supposés soumis à un **pompage homogène**. Cette hypothèse est notamment valide si les deux faisceaux sont suffisamment désaccordés, mais pas seulement : si la pompe est résonante, mais que le niveau $F=3$ n'est pas peuplé, alors l'hypothèse est bien vérifiée.
- On considère un **repompeur désaccordé**, de sorte que la lumière diffusée de façon inélastique au voisinage de la transition $F = 2 \rightarrow F' = 3$ subit un piégeage radiatif très limité, et l'on néglige son impact sur la réponse atomique.
- La diffusion inélastique Raman de la lumière pompe constitue dans notre modèle une source à une fréquence voisine de la transition $F = 2 \rightarrow F' = 2$. Le rayonnement correspondant peut subir un piégeage radiatif, qui fait croître l'intensité diffuse dans le milieu. **On modélise l'impact sur les atomes de ce rayonnement diffus par un terme de pompage incohérent** ajouté aux équations de Bloch optiques. Cette hypothèse est utilisée dans plusieurs modèles pour rendre compte de l'impact du rayonnement diffus sur la réponse atomique [Beeler 2003, Frank 2009]. Elle est notamment pertinente lorsque le spectre de l'émission atomique est relativement large, donc pour une pompe résonante (voir figure II.6) ; mais elle reste cependant discutable dans le cas qui nous intéresse, et exclut notamment toute prise en compte dans notre modèle du gain Raman, qui est fondamentalement un processus cohérent. Par conséquent, le modèle décrit l'impact sur les signaux de photodétection du piégeage radiatif du rayonnement des sources que constituent les atomes, mais ne peut rendre compte d'un effet lié au laser aléatoire.
- Enfin, on suppose le rayonnement diffus caractérisé par un désaccord unique fixé par celui de la pompe. **Ce désaccord détermine notamment l'efficacité du piégeage radiatif.**

Finalement, il nous reste à coupler un modèle de transport de la densité spectrale d'énergie u_P à une fréquence unique $\omega_P = \omega_{22'} + \delta_D$ à un modèle de la réponse atomique.

IV.2.2 Ecriture des équations couplées

Equation de transport

L'équation de la diffusion I.47 décrit l'évolution de la densité spectrale d'énergie u_P dans le milieu. En regroupant les termes d'absorption ou de gain dans le terme source qui décrit la puissance émise par l'atome à la position \mathbf{r} en présence d'une densité spectrale

d'énergie $u_P(\mathbf{r})$, cette équation de la diffusion s'écrit :

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} - \mathcal{D}\Delta \right] u_P(\mathbf{r}, t) = S(\mathbf{r}, t)$$

où le coefficient de diffusion est donné par l'équation I.46 :

$$\mathcal{D} = \frac{v_E}{3n_0\sigma_{\text{ext}}}$$

tandis que le terme source est simplement le produit de la densité d'atomes et du surplus de puissance W_{ω_P} émis par l'atome à la fréquence ω_P :

$$S = n_0 W_{\omega_P} \quad (\text{IV.1})$$

Comment coupler ce modèle de transport à des équations décrivant la réponse atomique, en prenant en compte l'impact de l'intensité diffuse sur la réponse d'un atome ? L'atome est soumis à un flux total I_P – que nous appellerons intensité diffuse – que l'on peut calculer en intégrant la luminance sur les directions d'incidence :

$$I_P = \int_{4\pi} L_{\omega_P} d\Omega = v_E u_P \quad (\text{IV.2})$$

Pour obtenir un modèle auto-consistant, il nous reste à calculer la puissance émise par un atome isolé, et sa section efficace d'extinction, lorsqu'il est soumis aux lasers extérieurs pompe et repompeur, et à une intensité I_P “incohérente” à la fréquence ω_P .

Il est possible de faire apparaître directement l'intensité diffuse I_P dans l'équation de la diffusion. En régime stationnaire, celle-ci devient :

$$\left[\frac{l_{\text{ext}}}{3} \Delta \right] I_P(\mathbf{r}, t) = -S(\mathbf{r}, t) \quad (\text{IV.3})$$

Finalement, en supposant que c'est l'intensité diffuse I_P qui détermine la réponse atomique, et non par exemple le champ électrique local¹, nous obtenons un modèle dans lequel la vitesse de l'énergie n'intervient plus lorsque l'on considère le régime stationnaire².

Equations de Bloch optiques avec termes de pompage incohérent

Afin de décrire la réponse atomique à l'excitation des champs pompe et repompeur, on utilise les équations de Bloch optiques (EBO) pour un atome à 4 niveaux effectifs, déjà

1. Cette hypothèse est discutable, nous y reviendrons au paragraphe suivant

2. Plus précisément, elle n'intervient plus dans le calcul des quantités mesurables à l'extérieur du milieu, même si elle apparaît dans l'expression de la densité spectrale d'énergie dans le milieu.

employées au chapitre III pour décrire la configuration de gain Raman hyperfin et écrites explicitement dans l'annexe B. Dans le cadre du modèle réalisé ici, les seules pulsations de Rabi non nulles sont celles de la pompe et du repompeur. Pour rendre compte de l'effet sur les populations atomiques du pompage incohérent provoqué par l'intensité diffuse, on introduit dans les équations d'évolution des populations des niveaux $F = 2$ et $F' = 2$ des termes supplémentaires inspirés des équations d'Einstein³ :

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial \langle \tilde{S}_{22} \rangle}{\partial t} = \frac{\partial \langle \tilde{S}_{22} \rangle}{\partial t} \right)_{EBO} &+ \overbrace{B_{22'}(\delta_P) I_P}^{\Gamma_{eff}} (\langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle - \langle \tilde{S}_{22} \rangle) \\ \left. \frac{\partial \langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle}{\partial t} = \frac{\partial \langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle}{\partial t} \right)_{EBO} &- B_{22'}(\delta_P) I_P (\langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle - \langle \tilde{S}_{22} \rangle) \end{aligned} \quad (IV.4)$$

Les équations d'évolution des autres termes de la matrice densité sont inchangées. $\delta_P = \omega_P - \omega_{22'} = \delta_D$ est le désaccord du rayonnement piégé. $B_{22'}$ est un coefficient d'Einstein, qui dépend de ce désaccord. Enfin, nous avons introduit le taux de pompage effectif Γ_{eff} :

$$\Gamma_{eff} = B_{22'}(\delta_P) I_P \quad (IV.5)$$

Une difficulté apparaît cependant pour déterminer la valeur du coefficient d'Einstein $B_{22'}$. En effet, les équations d'Einstein décrivent usuellement l'interaction avec l'atome d'un rayonnement de largeur spectrale grande devant Γ , auquel on ne peut associer de désaccord. Ici, cependant, le rayonnement considéré possède une largeur spectrale comparable à Γ , et son désaccord a un impact primordial sur l'efficacité du piégeage radiatif. Pour déterminer quelle valeur du coefficient B utiliser, on compare les solutions des équations d'Einstein et de Bloch optiques pour un atome à deux niveaux $|i\rangle$ et $|j\rangle$. Les équations d'Einstein s'écrivent :

$$\frac{\partial \langle \tilde{S}_{ii} \rangle}{\partial t} = -\frac{\partial \langle \tilde{S}_{jj} \rangle}{\partial t} = B_{ij} I_P (\langle \tilde{S}_{jj} \rangle - \langle \tilde{S}_{ii} \rangle) + \Gamma \langle \tilde{S}_{jj} \rangle \quad (IV.6)$$

En régime stationnaire, on obtient

$$\langle \tilde{S}_{jj} \rangle = \frac{1}{2} \frac{\frac{2BI_P}{\Gamma}}{1 + \frac{2BI_P}{\Gamma}} \quad (IV.7)$$

Tandis que la solution des équations de Bloch-optiques est donnée par (équation II.11) :

$$\langle \tilde{S}_{jj} \rangle = \frac{1}{2} \frac{s}{1 + s}, \quad s = \frac{\frac{\Omega_P^2}{2}}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (IV.8)$$

3. Nous aurions également pu utiliser uniquement des équations d'évolution des populations similaires aux équations d'Einstein. L'impact d'un tel choix sur les résultats de notre modèle reste à déterminer.

Avec $I = \frac{c}{2}\epsilon_0 E^2$ et $\Omega_P = \frac{D_{ij}E}{\hbar}$, il vient par identification :

$$B_{ij} = \frac{2}{\epsilon_0 \Gamma c} \left(\frac{D_{ij}}{\hbar} \right)^2 \frac{1}{1 + 4 \frac{\delta^2}{\Gamma^2}} \quad (\text{IV.9})$$

Dans le cas de l'atome à deux niveaux, ce résultat peut être réécrit en utilisant l'expression II.26 du taux de désexcitation Γ :

$$B_{ij} = \frac{\sigma_0}{\hbar \omega} \frac{1}{1 + 4 \frac{\delta^2}{\Gamma^2}} \quad (\text{IV.10})$$

On généralise cette expression au cas d'atomes multi-niveaux en remplaçant σ_0 par la section efficace d'extinction de l'atome passif éclairé sur la résonance ij (obtenue via l'équation II.72 dans le cas de niveaux dégénérés).

Choix du taux de pompage effectif

Dans le raisonnement ci-dessus, nous avons déterminé le champ électrique et donc la pulsation de Rabi qui excite l'atome à partir de la relation liant l'intensité au champ pour une onde plane se propageant dans le vide :

$$I_P = c\epsilon_0 E_P^2/2 \quad (\text{IV.11})$$

D'autre part, l'intensité éclairant l'atome dans le milieu a été calculée en utilisant la relation :

$$I_P = v_E u_P = v_E \epsilon_0 \epsilon_r E_P^2/2 \quad (\text{IV.12})$$

Cela nous a conduit à écrire le taux de pompage Γ_{eff} intervenant dans les équations de Bloch-optiques comme :

$$\Gamma_{eff} = B_{22'}(\delta_P) I_P \quad (\text{IV.13})$$

où $B_{22'}$ est donné par l'équation IV.10. Cependant, nous aurions pu calculer le champ électrique E_P et la pulsation de Rabi excitant l'atome (qui intervient dans IV.8) directement à partir de la densité spectrale d'énergie u_P dans le milieu. En considérant $\epsilon_r \sim 1$ (limite d'un milieu très dilué), il vient alors :

$$\Gamma'_{eff} = \frac{c}{v_E} B_{22'}(\delta_P) I_P \quad (\text{IV.14})$$

Le taux de pompage obtenu est alors augmenté d'un facteur c/v_E . Cette ambiguïté n'a pas été clarifiée à notre connaissance. Derrière elle, se cache la question de savoir comment lier les grandeurs microscopiques locales qui déterminent l'excitation atomique aux grandeurs moyennes, qui caractérisent le milieu effectif homogénéisé, données par les équations de transport. Cependant, deux éléments poussent à privilégier la première approche :

- D'une part, elle conduit à des valeurs indépendantes de la vitesse de l'énergie dans le milieu pour les observables du système en régime stationnaire.
- D'autre part, nous verrons qu'elle amène à un ordre de grandeur de l'épaisseur optique à laquelle se développe le pic central de fluorescence compatible avec les observations expérimentales ; ce n'est pas le cas de la seconde approche si l'on utilise pour la vitesse de l'énergie, par ailleurs inconnue, celle valable dans le milieu passif.

Résolution numérique des équations couplées

On cherche à obtenir numériquement la solution stationnaire de l'équation de la diffusion ; le terme source et la section efficace d'extinction dépendent de la position et doivent être calculés à partir de la matrice densité donnée par les équations de Bloch optiques. L'échantillon est assimilé à une sphère homogène de densité d'atomes n_0 et de rayon R . Comme au chapitre I, on peut réécrire l'équation de la diffusion en coordonnées sphériques, mais aussi adimensionner les paramètres r et t pour faciliter sa résolution numérique. En introduisant :

$$\begin{cases} r' = \frac{r}{R} \\ t' = \frac{v_E}{3n_0\sigma_0 R^2} t \end{cases} \quad (\text{IV.15})$$

l'équation de la diffusion se réécrit :

$$\left[\frac{\partial}{\partial t'} - \frac{\sigma_0}{\sigma_{\text{ext}}(\omega_P)} \left(\frac{\partial^2}{\partial r'^2} + \frac{2}{r'} \frac{\partial}{\partial r'} \right) \right] I_P(r', t') = \frac{3b_0^2}{4\sigma_0} W_{\omega_P}(r', t') \quad (\text{IV.16})$$

On note que les caractéristiques du milieu (taille, densité...) n'interviennent plus qu'au travers de l'épaisseur optique. La section efficace d'extinction pour le rayonnement diffus est donnée en fonction des solutions des éléments de la matrice densité par (voir l'équation II.72 ou le calcul précédent du coefficient d'Einstein) :

$$\sigma_{\text{ext}}(\delta_P) = \frac{\sigma_0}{1 + 4(\delta_P)/\Gamma^2} \frac{1}{3} \frac{2J' + 1}{2J + 1} \underline{S}_{22'} (\langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle - \langle \tilde{S}_{22} \rangle) \quad (\text{IV.17})$$

Enfin, la puissance W_{ω_P} intervenant dans le terme source vaut :

$$W_{\omega_P} = \hbar\omega_P \Gamma_{22'} \langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle - \sigma_{\text{ext}} I_P \quad (\text{IV.18})$$

L'équation de transport IV.16 est discrétisée sur un maillage spatial fixe à une dimension, et l'évolution de sa solution en fonction du temps est calculée par une méthode de Runge-Kutta classique. On impose comme conditions aux limites l'annulation de l'intensité diffuse à une extrémité du maillage ($r = R$), l'annulation de sa dérivée à l'autre extrémité ($r = 0$, pour des raisons de symétrie). Enfin, on considère que la solution a convergé vers la solution stationnaire lorsque le maximum de l'écart relatif entre deux solutions successives ne dépasse pas une limite faible, arbitraire.

Calcul des signaux de photodétection

Le modèle précédent permet de calculer plusieurs grandeurs accessibles à la mesure. La puissance totale du rayonnement de fluorescence P_F , supposée proportionnelle à l'intensité I_F collectée dans un large angle solide, est donnée par la somme des puissances prélevées sur les faisceaux incidents extérieurs par chaque atome :

$$P_F = \sum_{\text{Atomes } j} (\sigma_{\text{ext}}(\mathbf{r}_j, \omega_D) I_D + \sigma_{\text{ext}}(\mathbf{r}_j, \omega_{Rp}) I_{Rp}) \quad (\text{IV.19})$$

Elle peut encore s'écrire comme la somme des puissances émises sur chaque transition :

$$P_F = \sum_{\text{Atomes } j} \left[\underbrace{\Gamma_{23'} \langle \tilde{S}_{3'3'} \rangle}_{\sim \omega_{23'}} + \underbrace{\Gamma_{33'} \langle \tilde{S}_{3'3'} \rangle}_{\sim \omega_{33'}} + \underbrace{\Gamma_{32'} \langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle}_{\sim \omega_{32'}} + \underbrace{\Gamma_{22'} \langle \tilde{S}_{2'2'} \rangle - \sigma_{\text{ext}}(\mathbf{r}_j, \omega_P) I_P(\mathbf{r}_j)}_{\sim \omega_{22'}} \right] \quad (\text{IV.20})$$

Cette décomposition permet de déterminer l'allure de spectres basse résolution du rayonnement de fluorescence. Notons que le dernier terme n'est autre que W_{ω_P} , la puissance source intervenant dans l'équation de la diffusion IV.16.

Enfin, les populations atomiques moyennes dans l'échantillon peuvent être déterminées par une intégration numérique des termes correspondants de la matrice densité. Toutefois, expérimentalement, on mesure par imagerie d'absorption les populations atomiques dans les niveaux fondamentaux $F = 2$ et $F = 3$ après avoir coupé les faisceaux pompe et repompeur d'excitation. Il est donc nécessaire de prendre en compte la décroissance naturelle des populations des états excités vers ces deux états fondamentaux. D'autre part, notons que cette mesure peut être fortement perturbée par un défaut de synchronisation des coupures des deux faisceaux.

IV.2.3 Comparaison aux résultats expérimentaux

La résolution numérique des équations du modèle couplé nous donne accès au profil de l'intensité diffuse dans le milieu. Il est représenté sur la figure IV.3. On constate que, si l'intensité diffuse a un impact significatif sur les populations et donc sur la réponse atomique, son profil reste voisin de celui obtenu en supposant le terme source et le coefficient de diffusion intervenant dans l'équation de transport indépendants de la position.

La figure IV.4 compare les observations expérimentales réalisées pour une pompe d'intensité "intermédiaire" (configuration identique à celle de la figure IV.1) aux prédictions du modèle. Lorsque la pompe est quasi résonante, les évolutions avec l'épaisseur optique de l'intensité et du spectre de la fluorescence sont qualitativement bien expliquées par

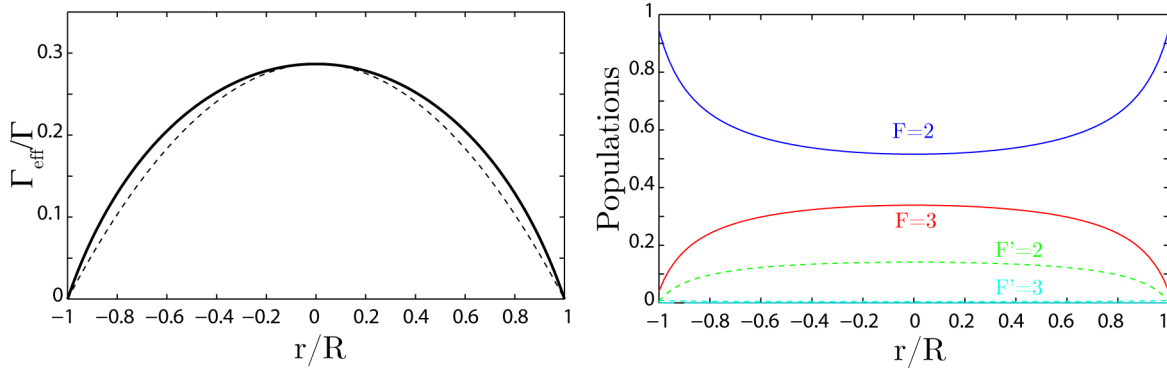


Figure IV.3 – Profil du taux de pompage effectif Γ_{eff} , proportionnel à l'intensité diffuse (à gauche, trait plein) et des populations atomiques (à droite) dans le milieu, déterminés en résolvant numériquement l'équation IV.16 couplée aux équations de Bloch optiques IV.4. Le taux de pompage Γ_{eff} est comparé au résultat obtenu pour un milieu dans lequel le terme source et le coefficient de la diffusion sont constants (trait pointillé). L'épaisseur optique vaut $b_0 = 50$, et les conditions d'éclairement sont identiques à celles de la figure IV.1. Le désaccord de la pompe δ_D est nul, de sorte que l'on est en régime de fort piégeage radiatif. On note que le taux de pompage dû au rayonnement diffus est alors de l'ordre de Γ .

notre modèle. C'est aussi le cas en ce qui concerne la tendance d'évolution des populations atomiques, même si l'impact du rayonnement diffus est plus marqué dans le modèle que ce qui est observé expérimentalement (figure IV.4 c). Sans doute la non prise en compte de l'effet du rayonnement diffus autour de la transition $33'$ explique-t-elle partiellement cette différence. Quoiqu'il en soit, ces résultats tendent à valider l'explication simple de la croissance du pic central de fluorescence avec l'épaisseur optique présentée au paragraphe IV.1.2.

Pour une pompe désaccordée, cependant, le modèle ne prévoit aucune évolution de l'intensité de la fluorescence avec b_0 , et la qualité des mesures est insuffisante pour se prononcer à ce sujet. Pour une pompe de forte intensité, en revanche, une croissance significative de l'intensité du rayonnement de fluorescence est observée expérimentalement. Elle n'est pas reproduite par notre modèle, ce qu'illustre la figure IV.5.

Finalement, le modèle de piégeage radiatif d'un rayonnement incohérent donne des résultats en bon accord avec les observations expérimentales lorsque la pompe est faiblement désaccordée. C'est aussi dans cette gamme de paramètres que le spectre de la lumière diffusée autour de la transition $22'$ est le plus large (voir figure II.6), et que cela a un sens de négliger son effet sur les cohérences atomiques.

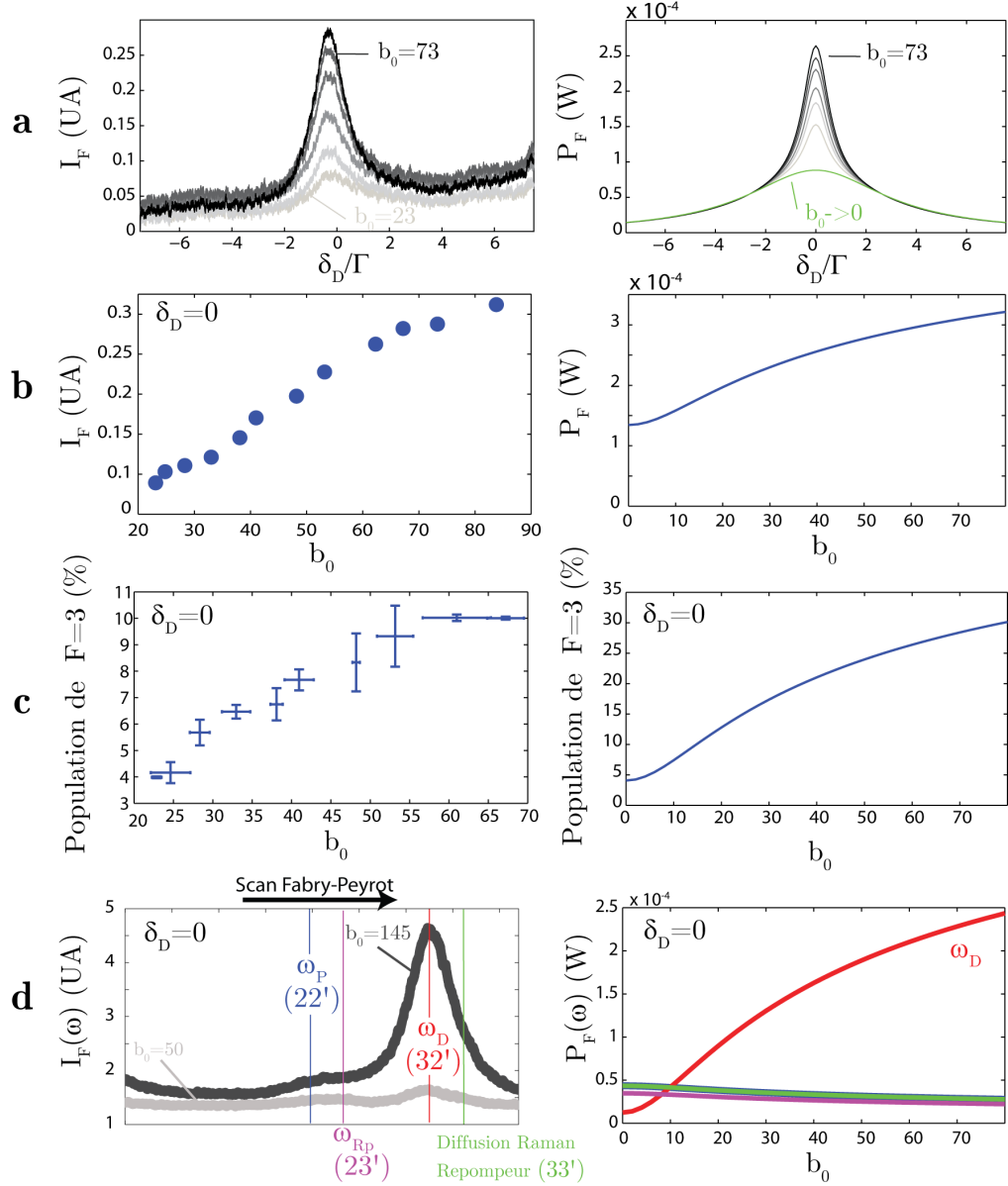


Figure IV.4 – Mesures caractérisant le piégeage radiatif (à gauche) comparées aux résultats du modèle couplé (à droite), dans des conditions identiques à celles de la figure IV.1. **a.** Intensité I_F du rayonnement de fluorescence en fonction du désaccord δ_D pompe par rapport à la transition $F = 3 \rightarrow F' = 2$ (à gauche). Elle est comparée à la puissance totale calculée P_F de la fluorescence. **b.** Intensité du rayonnement de fluorescence en fonction de l'épaisseur optique, à $\delta_D = 0$. **c.** Population de l'état $F = 3$ en fonction de l'épaisseur optique, à $\delta_D = 0$. **d.** A gauche, spectre du rayonnement de fluorescence, obtenu via une cavité Fabry-Pérot en intégrant 3000 mesures de 1ms; la résolution est limitée, mais l'on constate néanmoins que la diffusion élastique de la pompe, à la fréquence ω_D , contribue de façon majoritaire au rayonnement de fluorescence à haute épaisseur optique. A droite, évolution avec l'épaisseur optique de l'intensité émise sur les différentes lignes spectrales.

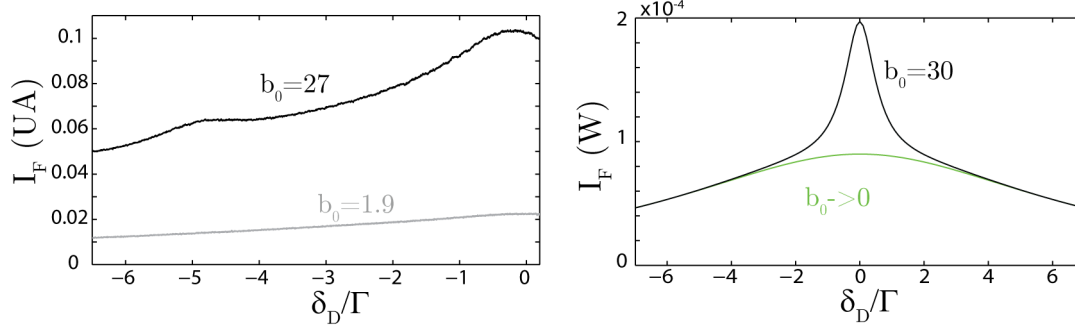


Figure IV.5 – Intensité I_F du rayonnement de fluorescence en régime de pompage fort, comparée aux résultats du modèle couplé. Les conditions expérimentales sont identiques à celles de la figure IV.2. Cette fois, le modèle est clairement mis en défaut : il n'explique ni la croissance de l'intensité de la fluorescence observée pour une pompe désaccordée, ni bien sûr le pic de fluorescence observé lorsque la pompe est résonante avec la transition interdite $F = 3 \rightarrow F' = 1$.

IV.3 Piégeage radiatif cohérent

Pour une pompe désaccordée de quelques largeurs naturelles par rapport à la transition $F = 2 \rightarrow F' = 2$, le modèle décrit précédemment ne permet pas d'expliquer les observations expérimentales. En supposant le rayonnement diffus large bande, et en modélisant son effet sur les atomes par des taux de pompage des populations, il occulte la possibilité de transitions multiphotoniques ; il mésestime ainsi l'intensité du rayonnement diffus et son impact sur les signaux de photodétection.

C'est ce qu'illustre la figure IV.6. On y considère une situation où la pompe est désaccordée de -4Γ par rapport à la transition qu'elle excite, de sorte que le spectre de la lumière diffusée Raman est fin devant la largeur naturelle des états excités. Cependant, la modification δP_F de la puissance de la fluorescence liée à la présence d'un rayonnement diffus varie violemment en fonction de son désaccord. Notamment, son signe change sur la largeur du spectre d'émission Raman. Bien que ce spectre soit fin devant Γ , il n'est donc pas possible de considérer la lumière issue des atomes comme monochromatique pour rendre compte de son impact sur les signaux de photodétection.

Impact d'un laser aléatoire sur les signaux de photodétection

Sur la figure IV.6, la gamme de désaccords par rapport à la transition $F = 2 \rightarrow F' = 2$ où du gain Raman peut être obtenu est représentée en grisé ; la section efficace de gain est donnée par l'équation III.14, où la polarisabilité atomique est calculée à partir de la matrice densité obtenue en résolvant les équations de Bloch optiques pour un système à 4

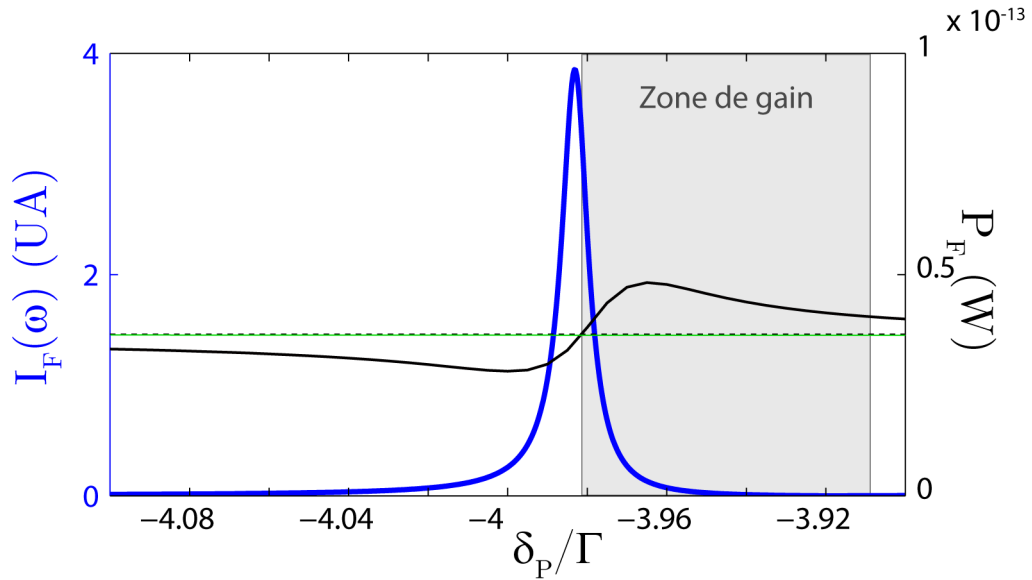


Figure IV.6 – Influence du rayonnement diffus sur la puissance P_F du rayonnement de fluorescence, en fonction de son désaccord. Les conditions de pompage sont identiques à celles de la figure IV.1 ; le désaccord pompe est fixé à $\delta_D = -4\Gamma$. Bien sûr, si l'on prend ici la liberté de balayer le désaccord du rayonnement diffus, son spectre n'est en réalité pas un paramètre que l'on peut ajuster expérimentalement.

On calcule la puissance émise par un atome unique à 4 niveaux, soumis à un faisceau P de désaccord δ_P par rapport à la transition $22'$, et dont l'intensité est arbitrairement fixée à 0.5 mW/cm^2 . Si un rayonnement incohérent d'une telle intensité a sur la fluorescence un impact négligeable (ligne verte), ce n'est pas le cas d'un rayonnement spectralement fin (ligne continue noire) qui écarte significativement le niveau de fluorescence de la valeur qu'elle prend pour un atome soumis aux faisceaux pompe et repompeur seulement (ligne pointillé noire).

La puissance du rayonnement de fluorescence est calculée via l'équation IV.19, à partir de la matrice densité atomique obtenue en résolvant numériquement les équations de Bloch optiques II.60 (rayonnement diffus P supposé spectralement fin) ou IV.4 (rayonnement diffus P supposé incohérent).

Si le spectre du rayonnement diffus est celui du rayonnement émis par un atome soumis aux seuls pompe et repompeur (courbe continue bleue, obtenue à partir de l'équation II.78), ce rayonnement a en moyenne un impact nul sur l'intensité de la fluorescence. En revanche, de la lumière issue de l'émission spontanée amplifiée ou d'un laser aléatoire (dont la fréquence est incluse dans la zone de gain, en grisé) tend à faire croître cette intensité.

niveaux (voir Annexe B). On constate que si un faisceau est susceptible d'être amplifié, il tend à provoquer une augmentation de l'intensité du rayonnement de fluorescence. En d'autres termes, l'émission spontanée amplifiée ou le rayonnement issu d'un laser aléatoire ont tendance à faire augmenter cette intensité.

On cherche à déterminer l'impact d'un éventuel laser aléatoire sur les signaux de photodétection. Pour cela, on fait temporairement l'hypothèse que seul un laser aléatoire est susceptible de créer une intensité diffuse dans le milieu, qui influence l'émission des atomes. L'intensité diffuse ne peut par conséquent être non nulle que lorsque la condition de seuil du laser aléatoire est vérifiée. Bien sûr, on néglige ainsi totalement le rayonnement qu'induit un atome sur son voisin en dessous du seuil du laser aléatoire, qu'il s'agisse d'émission spontanée ou d'émission spontanée amplifiée.

Pour déterminer la valeur de cette intensité, nous avons calculé les sections efficaces d'extinction et de gain d'un atome soumis à des faisceaux sonde d'intensité croissante (selon le modèle A présenté au paragraphe III.3.4, qui rajoute à notre modèle 4 niveaux la diffusion introduite par la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$). A partir de ces sections efficaces, qui prennent en compte les effets de saturation, on calcule le seuil Letokhov (équation III.15) du laser aléatoire. Lorsque celui-ci égale l'épaisseur optique de l'échantillon que l'on considère, on peut supposer que l'intensité du faisceau incident correspond à l'intensité diffuse reçue par les atomes dans l'échantillon en présence d'un laser aléatoire. A partir de là, on calcule la puissance émise sur les différentes transitions via l'équation IV.20.

La figure IV.7 compare les prédictions d'un tel modèle aux observations expérimentales en régime de pompage fort. Certaines signatures expérimentales semblent bien correspondre aux prédictions du modèle. Notamment, un pic de fluorescence, non présent aux faibles épaisseurs optiques, apparaît lorsque b_0 croît pour une pompe quasi-résonante avec la transition interdite $F = 3 \rightarrow F' = 1$. L'amplitude de ce pic semble de plus présenter un seuil dans sa variation avec b_0 . Enfin, l'expérience comme la théorie prévoient l'accroissement avec b_0 des intensités de plusieurs lignes spectrales dans le rayonnement de fluorescence, contrairement à ce qui est observé lorsque la pompe est résonante avec la transition $F = 2 \rightarrow F' = 2$.

Cependant, les similitudes s'arrêtent là. Le modèle n'explique pas la croissance globale de la fluorescence observée pour tous les désaccords pompe. D'autre part, il prévoit un seuil en épaisseur optique pour l'apparition du pic latéral de fluorescence plus élevé que ce qui est observé expérimentalement. Finalement, pour l'intensité repompeur utilisée, le pic latéral de fluorescence est obtenu dans le modèle pour un désaccord repompeur de -2Γ , pour lequel le seuil du laser aléatoire est minimal. Cela ne correspond pas à la situation expérimentale dans laquelle ce pic est observé ($\delta_{Rp} = -5\Gamma$).

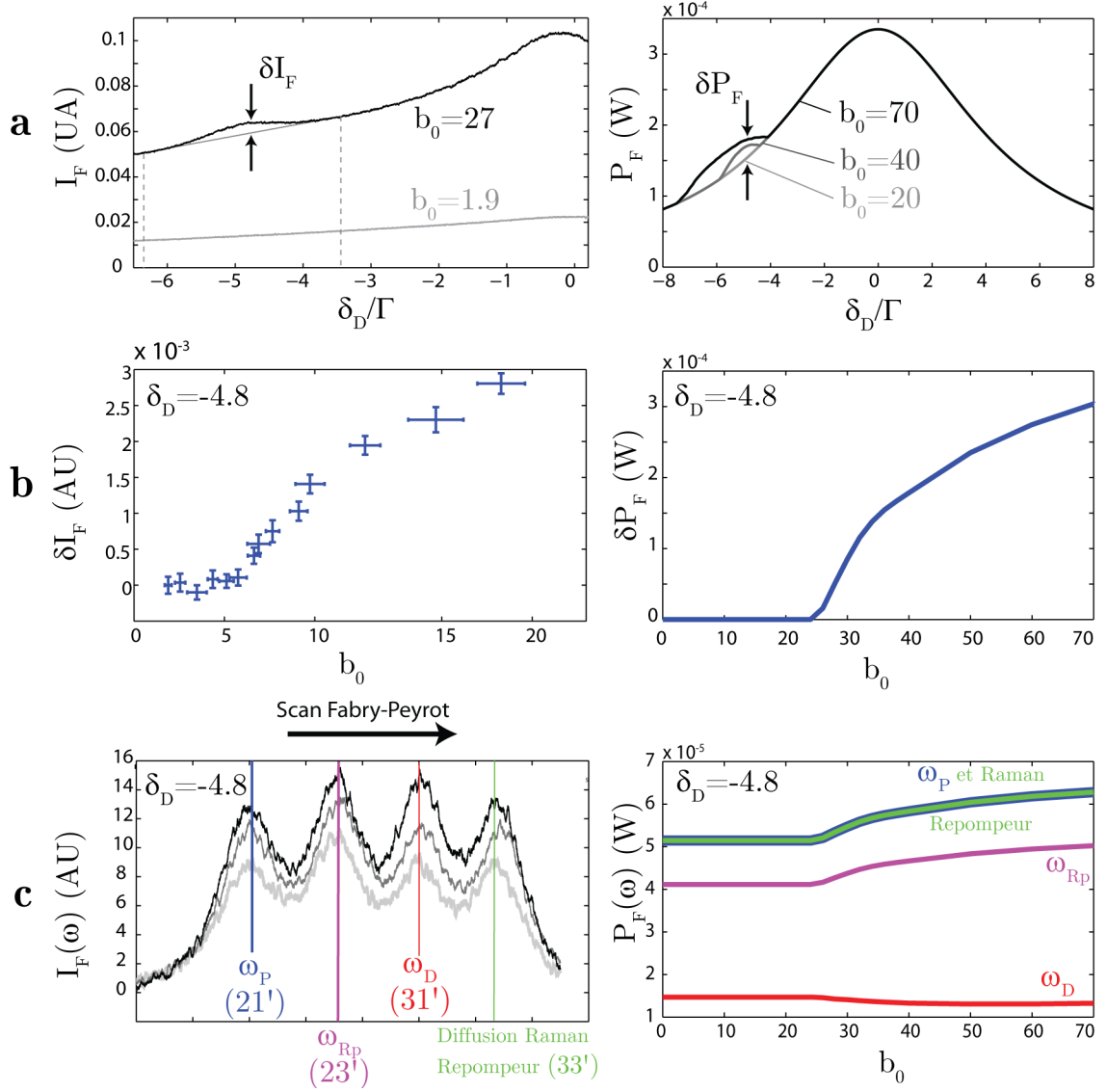


Figure IV.7 – Impact sur les signaux de photodétection d'un laser aléatoire (à droite), estimé numériquement, comparé aux mesures réalisées en régime de pompage fort (à gauche). **a.** Intensité I_F du rayonnement de fluorescence en fonction du désaccord δ_D pompe par rapport à la transition $F = 3 \rightarrow F' = 2$ (à gauche), comparée à sa puissance totale calculée P_F . **b.** Amplitude du pic de fluorescence, à $\delta_D = -4.8\Gamma$, en fonction de l'épaisseur optique. Cette amplitude est estimée à partir de la courbe $I_F = f(\delta_D)$, en soustrayant un niveau de référence donné par une droite passant par deux points d'abscisse fixée (voir a.). **c.** A gauche, spectre du rayonnement de fluorescence, obtenu via une cavité Fabry-Perot. Cette fois, on constate que toutes les lignes spectrales contribuent à la hausse de l'intensité de fluorescence avec l'épaisseur optique b_0 . A droite, évolution avec b_0 de l'intensité émise sur les différentes lignes spectrales en présence d'un laser aléatoire.

Les figures de gauche reportent des mesures réalisées dans des conditions identiques à celles de la figure IV.2. Les conditions sont les mêmes pour les figures de droite, si ce n'est que le désaccord repompeur a été ajusté à $\delta_{Rp} = -2\Gamma$ pour minimiser le seuil du laser aléatoire.

Emission spontanée amplifiée ?

Nous pouvons finalement tenter quelques conjectures pour expliquer plus avant les observations expérimentales. Dans le modèle de laser aléatoire, le rayonnement diffus existant dans l'échantillon en dessous du seuil laser a été négligé, qu'il s'agisse d'un éclaircissement direct ou d'un rayonnement à l'intensité exacerbée par le piégeage radiatif.

Il semble probable que ce rayonnement diffus, au voisinage des transitions $22'$ mais aussi $33'$, soit à l'origine de l'accroissement observé de la fluorescence. Nos modèles semblent cependant indiquer que ce ne peut être le cas si ce rayonnement est simplement issu de l'émission spontanée des atomes soumis aux seules pompes et repompeurs. En revanche, si son spectre est déformé par un phénomène de gain, il peut provoquer l'accroissement de l'intensité de la fluorescence (ce que met en évidence la figure IV.6). **Dans cette interprétation, le pic latéral de fluorescence observé peut être expliqué en invoquant un phénomène d'émission spontanée amplifiée couplée à de la diffusion** et donc un piégeage radiatif supplémentaire introduit par la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$.

En bref, ces signatures semblent signifier que les ingrédients du laser aléatoire sont bien réunis dans notre échantillon. Reste à savoir si le rayonnement des "sources" - l'émission des atomes en dessous du seuil - sature ou supprime le gain et prévient l'observation du laser aléatoire ; ou si, aux hautes épaisseurs optiques, un laser aléatoire existe dans notre échantillon, mais dont la mise en évidence est gênée par l'existence du rayonnement source en dessous du seuil.

Un modèle ab initio similaire à celui réalisé précédemment, et décrivant de façon couplée le transport du rayonnement et la réponse atomique, pourrait permettre de clarifier cette situation. Sa réalisation paraît malheureusement difficile. En effet, il semble nécessaire de prendre en compte le spectre du rayonnement diffus. A notre connaissance, les modèles existant à l'heure actuelle ne permettent pas de décrire aisément l'interaction d'un atome avec un rayonnement de spectre complexe, qui présente des variations significatives à une échelle comparable à la largeur des transitions atomiques.

IV.4 Conclusion

Ce chapitre s'ouvre sur un constat qui nous a initialement surpris. Dans un nuage d'atomes multi-niveaux, soumis à une excitation extérieure, **des signaux accessibles simplement à la mesure tels que l'intensité totale du rayonnement de fluorescence, sont fortement influencés par le rayonnement diffus** piégé au sein du milieu. C'est notamment le cas pour un nuage d'atomes pompés en configuration de gain Raman hyperfin, dans lequel nous cherchions à mettre en évidence le phénomène de laser

aléatoire. Dès lors, ces signaux peuvent nous renseigner sur les phénomènes de piégeage radiatif à l'oeuvre dans le milieu, et notamment comporter une signature (indirecte) du laser aléatoire.

Cependant, **l'effet collectif le plus spectaculaire mis en évidence** – une forte croissance de l'intensité de la fluorescence avec l'épaisseur optique, à nombre d'atomes constants – **a été observé en l'absence de gain sur aucune transition**. Dans cette configuration, le rayonnement diffus influence directement l'équilibre des populations atomiques. **Nous avons réalisé un modèle simple de piégeage radiatif incohérent**, couplant l'équation de la diffusion à des équations de Bloch optiques modifiées pour inclure des termes de pompage des populations. **Il nous a permis d'expliquer les effets collectifs les plus significatifs** observés pour une pompe résonante, lorsque le rayonnement émis par les atomes possède un spectre relativement large.

Bien sûr, nous pourrions étendre la gamme de validité d'un tel modèle en prenant en compte le piégeage radiatif sur l'ensemble des transitions susceptibles d'être excitées dans le système, et non sur une ligne spectrale unique comme nous l'avons fait. De ce point de vue, un nuage d'atomes froids peut constituer un échantillon test idéal pour les modèles de piégeage radiatif hors équilibre thermodynamique local, utilisés pour décrire la physique de certaines atmosphères planétaires ou stellaires [Lopez-Puertas 2001].

Lorsque la pompe est désaccordée par rapport à la transition $F = 3 \rightarrow F' = 2$ qu'elle excite, le spectre de la diffusion Raman atomique s'affine considérablement, tandis que dans certains régimes, le milieu donne lieu à du gain. Notre modèle de piégeage radiatif incohérent échoue alors à décrire nos observations expérimentales. Au contraire, **il semble nécessaire de tenir compte des caractéristiques spectrales du rayonnement diffus** pour expliquer son effet sur les atomes, et notamment de prendre en compte la possibilité de transitions multiphotoniques.

Dans un tel régime, la réalisation d'un modèle ab initio est délicate. Si nos observations expérimentales ne peuvent être interprétées de façon certaine comme la signature d'un laser aléatoire, elles semblent toutefois indiquer l'existence d'**émission spontanée amplifiée, dont l'efficacité est accrue par la diffusion multiple**. Pour pouvoir conclure sur l'existence ou non d'un laser aléatoire à atomes froids dans notre échantillon, il sera nécessaire de distinguer expérimentalement ces phénomènes, peut être via des expériences de statistiques de photons ou de spectroscopie haute résolution. D'autre part, toutes nos mesures jusqu'à présent ont été réalisées en régime stationnaire. Peut-être l'étude de la dynamique du système peut-elle nous renseigner davantage sur le type de mécanismes qui y sont à l'oeuvre ?

Troisième Partie

Vols de Lévy de la lumière dans une
vapeur atomique

Introduction

L'équation de la diffusion possède un champ d'application étonnamment large. Depuis la propagation de la chaleur dans un solide jusqu'à celle de la lumière dans le brouillard, d'innombrables phénomènes aléatoires à l'échelle mésoscopique semblent lui obéir. Cette généralité est liée au vaste domaine d'application du théorème de la limite centrale. Celui-ci, cependant, repose sur des hypothèses qui peuvent parfois - souvent ? - être violées.

Transport de la lumière dans une vapeur atomique : limites du modèle diffusif

Le modèle diffusif, nous l'avons vu, est pour la première fois appliqué au cas de la propagation de la lumière par Compton [Compton 1922, Compton 1923] pour décrire son transport dans une vapeur atomique éclairée à résonance. Peu après, cependant, des expériences pionnières en physique atomique mettent en évidence une décroissance du rayonnement de fluorescence d'une vapeur de mercure initialement excitée anormalement rapide par rapport aux prédictions du modèle diffusif [Zemansky 1927]. Kenty, le premier [Kenty 1932], comprend que les photons voyant leur fréquence décalée hors de résonance lors d'un processus de diffusion inélastique présentent une probabilité plus faible d'être rediffusés que les photons résonants. Ils peuvent donc parcourir une grande distance dans le gaz et s'échapper d'un échantillon de taille finie avec une meilleure efficacité. Quelques années plus tard, Holstein propose une équation integro-différentielle permettant de décrire le transport de la lumière étant donnée la distribution de la taille des pas réalisés par les photons [Holstein 1947].

D'après l'équation de transfert radiatif I.21, dans un milieu homogène et pour des photons de fréquence fixée, cette distribution est une exponentielle décroissante. Pour que sa forme change qualitativement, il est nécessaire que le milieu soit inhomogène ou que, comme c'est le cas dans les vapeurs atomiques, la fréquence du photon change au cours du processus de diffusion de sorte que la distribution globale de la taille des pas soit affectée. Holstein montre ainsi que, si la fréquence des photons est complètement redistribuée selon une gaussienne durant chaque processus de diffusion, la distribution de la taille des pas peut posséder un second moment divergent. Son modèle lui permet d'expliquer qualitativement les observations de Zemansky.

Notons qu'une théorie similaire sera développée indépendamment quelques années plus tard par la communauté des astrophysiciens, tentant de décrire le transfert radiatif dans les atmosphères stellaires hors équilibre thermodynamique local [Thomas 1957, Jefferies 1958, Thomas 1960].

Diffusion anormale

D'une manière générale, le transport de particules soumises à une marche aléatoire est bien décrit par l'équation de la diffusion dès lors que les premier et second moments des lois Q et P qui régissent respectivement la durée et la taille des pas sont finis - ce sont, on se le rappelle, les conditions d'application du théorème centrale limite. L'une des signatures de ce régime diffusif est que le déplacement quadratique moyen $\langle r^2 \rangle$ croît proportionnellement au temps t . A l'inverse, lorsque l'une des hypothèses d'application du théorème centrale limite est brisée, la propagation est en quelque sorte dominée par les événements rares. On parle de **diffusion anormale**.

Plus précisément, on distingue les régimes [Metzler 2004] :

- **Superdiffusif** lorsque la variance $\langle \Delta r^2 \rangle$ de la loi P régissant la taille des pas diverge, tandis que la durée moyenne $\langle \Delta \tau \rangle$ reste finie. La propagation est alors dominée par les pas de grande taille, et le modèle de marche aléatoire à temps continu (Continuous Time Random Walk, noté CTRW) donne :

$$\langle r^2 \rangle \propto t^\gamma \text{ avec } \gamma > 1$$

- **Subdiffusif**, lorsque la propagation est dominée par les pas de longue durée. (Durée moyenne des pas infinie, variance de la taille finie). Alors :

$$\langle r^2 \rangle \propto t^\gamma \text{ avec } \gamma < 1.$$

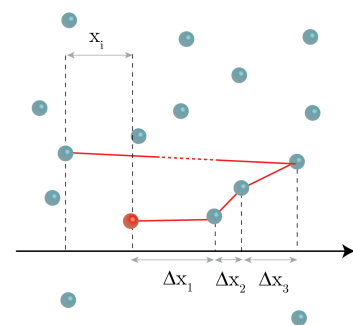
- **D'anomalie forte**, lorsque $\langle \Delta r \rangle^2$ et $\langle \Delta \tau \rangle$ sont non définies. La dépendance temporelle du libre parcours moyen peut alors être plus complexe qu'une loi de puissance.

Dans la suite de ce manuscrit, nous étudierons principalement le régime de superdiffusion.

Distributions de Lévy

Une façon de caractériser ce régime est de reconsidérer la question posée par Pearson et de rechercher la distribution dans l'espace de particules initialement à l'origine après un nombre de pas donné. Cette fois, la distribution P qui régit la taille des pas est quelconque et le théorème centrale limite ne s'applique pas. Cependant, le déplacement X_N selon une direction x après N pas est donné par :

$$X_N = \sum_{j=1}^N \Delta X_j$$



La variable aléatoire X_N est donc la somme de N variables aléatoires ΔX_j régies par des lois identiques. Le mathématicien Paul Lévy a montré que, dans ces conditions, si la loi Φ_N de X_N converge vers une loi limite Φ au sens où :

$$\exists a_N > 0, \exists b_N \in \mathbb{R}, \forall x \in \mathbb{R}, \Phi_N(a_N * x - b_N) \xrightarrow{N \rightarrow +\infty} \Phi(x)$$

alors Φ est une distribution stable [Lévy 1937] - et dans le cas qui nous intéresse, nécessairement paire. Une distribution stable symétrique Φ_{α_l} est de la forme :

$$\Phi_{\alpha_l}(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-|c(k-\mu)|^{\alpha_l}} e^{ikx} dk \quad (\text{A})$$

où c un paramètre d'échelle, μ est la moyenne de la distribution. Enfin, α_l décrit sa décroissance asymptotique ; pour que la distribution soit stable, ce paramètre est compris dans l'intervalle $]0; 2]$. Pour $\alpha_l = 2$, la loi obtenue est une gaussienne ; pour toute autre valeur de ce paramètre, elle présente une décroissance asymptotique en loi de puissance :

$$\Phi_{\alpha_l}(x) \underset{x \rightarrow +\infty}{\sim} x^{-(\alpha_l+1)}$$

La figure B montre un certain nombre de ces distributions stables symétriques encore appelées lois de Lévy.

Bien sûr, dans le cas général, la convergence de la loi Φ_N de X_N vers une limite quelconque n'est pas garantie. Cependant, d'après le théorème de la limite centrale généralisé [Gnedenko 1954], Φ_N converge dès que la distribution P_x de la taille des pas projetée selon une direction, qui régit les ΔX_j , vérifie :

$$P_x(\Delta x) = O_{+\infty}(\Delta x^{-\alpha}), \text{ avec } 1 \leq \alpha \leq 3 \quad (\text{B})$$

O dénote la domination d'une fonction par une autre. En cas d'équivalence, Φ_N converge pour N tendant vers l'infini vers une loi de Lévy de paramètre $\alpha_l = \alpha - 1$. Notons que, lorsque la distribution P de la taille des pas possède une décroissance asymptotique en loi de puissance de coefficient $-\alpha$, la loi P_x régissant la taille des pas selon une direction \mathbf{e}_x , et par conséquent le profil de densité limite Φ , possèdent le même comportement asymptotique [Berberan-Santos 2006].

Lorsque la durée et la taille des pas sont décorréélées, et leur durée moyenne $\langle \Delta\tau \rangle$ finie, le profil de densité des particules au temps $t = N \langle \Delta\tau \rangle$ coïncide avec la distribution des particules après N pas - pour N suffisamment grand. En conséquence, ce profil est une distribution de Lévy et présente une décroissance asymptotique lente par rapport au cas diffusif : les particules vont anormalement loin, ce qui correspond à un régime superdiffusif dit de **vols de Lévy** [Mandelbrot 1982]. En pratique, l'extension de cette distribution est au moins limitée par la vitesse finie de propagation des particules. Lorsque les échelles de temps et d'espace considérées rendent nécessaire de prendre en compte cette vitesse finie de propagation - et donc une certaine corrélation entre la taille et la durée des pas - on parle de marches de Lévy.

Equation de transport en régime de vols de Lévy

Le régime de vols de Lévy peut être caractérisé plus avant en utilisant le modèle de marche aléatoire en temps continu (CTRW). Dans un système à une dimension, la probabilité $\phi(x, t)$ qu'une particule parvienne à la position x et à l'instant t vérifie l'équation maîtresse [Klafter 1980, Metzler 2000b] :

$$\phi(x, t) = \int_{\mathbb{R}^3} d\Delta x \int_0^{+\infty} d\Delta \tau P(\Delta x) Q(\Delta \tau) \phi(x - \Delta x, t - \Delta \tau) + \delta(x) \delta(t)$$

où l'on a supposé que les particules effectuent des sauts instantanés entre des sites où elles sont susceptibles de demeurer, de sorte que les variables aléatoires Δx et $\Delta \tau$ décrivant la taille et la durée des pas sont indépendantes. δ dénote une fonction de Dirac.

On considère la situation où toutes les particules sont à l'origine à $t = 0$. Soit $\Psi(t) = 1 - \int_0^t Q(\Delta \tau) d\Delta \tau$ la probabilité qu'une particule reste sur un site pendant un temps t .

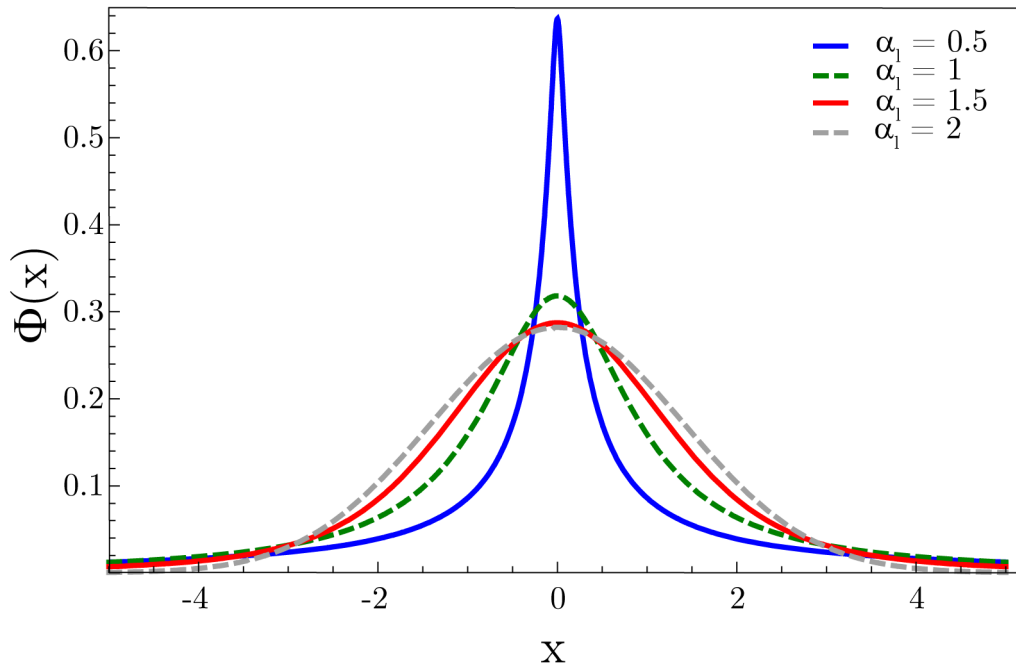


Figure B – Distributions de Lévy symétriques, de moyenne nulle et de paramètre d'échelle $c = 1$, obtenues pour différentes valeurs du paramètre de décroissance α_l . Pour $\alpha_l = 1$, on reconnaît une lorentzienne, pour $\alpha_l = 2$, une gaussienne.

La densité de probabilité de présence des particules s'écrit alors :

$$\Phi(x, t) = \int_0^t d\Delta\tau \phi(x, t - \Delta\tau) \Psi(\Delta\tau)$$

En prenant la transformée de Fourier spatiale (par rapport à x , de variable conjuguée k) et de Laplace temporelle (par rapport à t , de variable conjuguée s) de cette équation, on obtient :

$$\Phi(k, s) = \frac{1 - Q(s)}{s} \frac{1}{1 - P(k)Q(s)} \quad (\text{C})$$

Supposons à présent que la distribution Q de la durée des pas est poissonnienne, tandis que la distribution P de leur taille est une loi de puissance de variance divergente. On a pour $0 < \alpha_l < 2$ [Metzler 2000b] :

$$\begin{aligned} Q(t) &\sim_{+\infty} \exp[-t/\tau] \rightarrow Q(s) = 1 - s\tau + o_0(s) \\ P(x) &\sim_{+\infty} \left(\frac{\sigma}{x}\right)^{1+\alpha_l} \rightarrow P(k) = 1 - \sigma^{\alpha_l} |k|^{\alpha_l} + o_0(|k|^{\alpha_l}) \end{aligned}$$

En injectant ces expressions dans l'équation C, on obtient :

$$\Phi(k, s) = \frac{1}{s + \frac{\sigma^{\alpha_l}}{\tau} |k|^{\alpha_l}} \quad (\text{D})$$

Soit après une transformée de Laplace inverse :

$$\Phi(k, t) = e^{-\mathcal{D}_{\alpha_l} t |k|^{\alpha_l}} \quad (\text{E})$$

avec $D_{\alpha_l} = \sigma^{\alpha_l}/\tau$. On retrouve ainsi la transformée de Fourier d'une loi de Lévy, mais cette fois, le paramètre d'échelle nous est connu. D'après ce résultat, le déplacement quadratique moyen $\langle x(t)^2 \rangle$ diverge : cela provient de l'hypothèse faite que des pas infiniment longs peuvent être réalisés instantanément. Notons cependant que, pour $0 < \delta < \alpha_l$, les moments fractionnels

$$\langle |x|^\delta \rangle \propto t^{\frac{\delta}{\alpha_l}}$$

sont toujours définis, et leur dépendance temporelle est caractéristique d'un régime superdiffusif. Enfin, les règles d'inversion des transformées de Laplace et Fourier permettent d'obtenir à partir de l'équation D [Metzler 2000a, Metzler 2000b] :

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} - D_{\alpha_l} \frac{\partial^{\alpha_l}}{\partial x^{\alpha_l}} \right] \Phi(x, t) = 0 \quad (\text{F})$$

Ainsi, le problème de transport peut être décrit par une équation dont $\Phi(x, t)$ est la solution de Green. Elle est semblable à l'équation de la diffusion, mais fait intervenir des dérivées fractionnaires qui permettent de rendre compte du transport anormal.

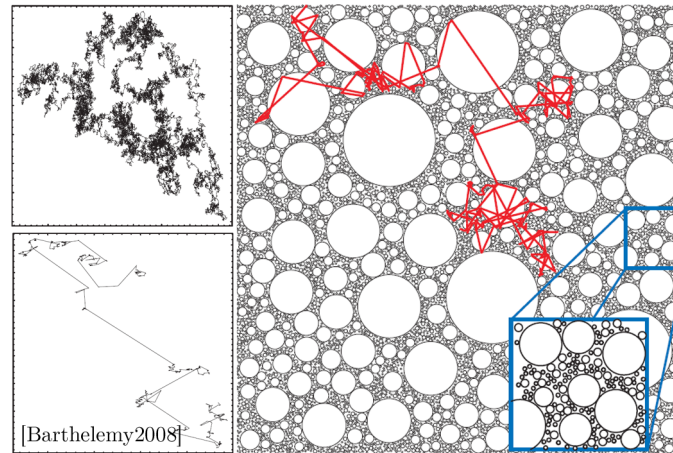


Figure C – **Exemples de trajectoires d'un rayon lumineux lors d'une marche aléatoire**, tirés de [Barthelemy 2008]. A gauche : trajectoires obtenues par simulations de Monte-Carlo lors d'une marche aléatoire brownienne (en haut) ou d'un vol de Lévy (en bas). La distribution de la taille des pas $P(x)$ décroît alors asymptotiquement comme $1/x$. A droite, illustration d'une trajectoire de la lumière dans un verre de Lévy, un matériau spatialement inhomogène conçu pour donner lieu à un transport anormal.

Portée du modèle de vols de Lévy

Les vols de Lévy sont susceptibles de décrire une large gamme de phénomènes biologiques, sociaux, ou physiques : processus de collecte de nourriture par certains animaux [Viswanathan 1996, Ayala-Orozco 2004], déplacements humains [Bertrand 2005, González 2008] ou fluctuations des marchés financiers [Bouchaud 2000]... Le large champ d'application du théorème centrale limite généralisé explique en quelque sorte cette omniprésence [Tsallis 1995] ; d'un autre côté, le caractère aléatoire de l'évolution des systèmes précités est parfois discuté, et par conséquent l'applicabilité de modèles statistiques [Edwards 2007]. En physique, le nombre d'observations expérimentales de vols de Lévy est resté limité [Ott 1990, Solomon 1993, Katori 1997]. Récemment cependant, la conception d'un matériau donnant lieu à des vols de Lévy de la lumière a ouvert la voie à une étude expérimentale paramétrique du régime de diffusion anormale (voir [Barthelemy 2008] et figure C). Notons que, dans tous les exemples cités ci-dessus, la forme de la distribution de la taille des pas provient de l'inhomogénéité spatiale du milieu, à même de créer une corrélation résiduelle entre les pas, et donc de briser les hypothèses du modèle de vols de Lévy.

Parallèlement à ces efforts expérimentaux, des outils ont été développés pour décrire le transport en régime de diffusion anormale, dont le plus important est sans doute l'équation de la diffusion aux dérivées fractionnaires. Aujourd'hui cependant, la question se pose de savoir dans quelle mesure les modèles de diffusion anormale et les outils qui

les accompagnent peuvent décrire des systèmes réels, de taille finie [Mantegna 1994], en présence de corrélations entre les pas.

Dans cette dernière partie, nous nous intéresserons à la diffusion anormale de lumière résonante dans une vapeur atomique à température ambiante. Nous présenterons un système expérimental permettant une mesure directe de la distribution P régissant la taille des pas réalisés par les photons⁴. Nous verrons que les lois mesurées présentent une décroissance asymptotique lente caractéristique d'un régime de superdiffusion, faisant des vapeurs atomiques l'un des systèmes les plus simples et peut-être le seul système spatialement homogène connu à ce jour donnant lieu à une marche aléatoire superdiffusive. Enfin, nous discuterons la pertinence d'un modèle de vols de Lévy et l'effet des corrélations entre les pas successifs.

4. On utilisera dans cette partie la notion de photon pour décrire la marche aléatoire de la lumière, bien qu'une description quantique du champ ou une quantification des échanges atomes-champ ne soit aucunement nécessaire.

Caractérisation microscopique du transport anormal

Ce dernier chapitre se focalise sur l'étude de la distribution P de la taille des pas réalisés par des photons quasi-résonants lors de leur marche aléatoire dans une vapeur atomique. Le projet décrit ici avait pour objectif de réaliser une mesure directe de cette distribution et de déterminer si le résultat obtenu permet ou non de classer la marche aléatoire des photons dans la catégorie des vols de Lévy. La présentation de ce chapitre suit le déroulement chronologique du projet.

Dans un premier temps, nous utiliserons un modèle simple des mécanismes de redistribution en fréquence tels que l'effet Doppler pour estimer leur impact sur la distribution P et montrer que celle-ci peut prendre la forme d'une loi de puissance de second moment divergent - caractéristique d'un régime de transport anormal [Pereira 2004]. Nous introduirons ensuite un système expérimental permettant de mesurer la distance parcourue par les photons provenant d'un laser entre leur première et leur seconde diffusion par les atomes d'une vapeur de rubidium ; et nous verrons que la distribution obtenue présente effectivement une variance infinie. Cependant, l'écart entre la mesure et les prédictions de notre premier modèle nous amènera à tenter d'affiner celui-ci. Surtout, il souligne le caractère singulier du premier pas du fait de la mémoire que les photons gardent de leur fréquence initiale. Nous montrerons qu'après un nombre de pas suffisant, cette corrélation est supprimée et que la distribution de la taille des pas correspondante est bien caractéristique d'un régime de superdiffusion.

V.1 L'Effet Doppler à l'origine de grands pas

Redistribution en fréquence et élargissement du profil d'absorption par effet Doppler

Un atome à deux niveaux possédant une vitesse \mathbf{v} , et éclairé avec une intensité faible devant son intensité de saturation, diffuse élastiquement les photons dans son référentiel

de repos - ce qui est imposé par le principe de conservation de l'énergie. Si l'on suppose la vitesse de l'atome faible devant celle de la lumière, un photon incident selon la direction \mathbf{e}_x , de pulsation ω dans le référentiel du laboratoire, possède dans le référentiel de repos de l'atome une pulsation $\omega(1 - \frac{\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_x}{c})$. Après diffusion selon \mathbf{e}' , la pulsation ω' du photon vue pour un observateur du laboratoire devient :

$$\omega' = \omega(1 - \frac{\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_x}{c})(1 + \frac{\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}'}{c}) \quad (\text{V.1})$$

Dans un gaz de température T non nulle, l'effet Doppler contribue donc à la redistribution de la fréquence de la lumière incidente lors du processus de diffusion. Bien sûr, les effets de diffusion inélastique par un atome immobile isolé décrits au chapitre II, ou encore des phénomènes d'échange d'énergie lors de collisions inter-atomiques se déroulant durant le processus de diffusion [Chen 1957], peuvent également participer à cette redistribution en fréquence.

La section efficace de diffusion des atomes, et par conséquent le libre parcours moyen de diffusion, varie fortement avec la fréquence au voisinage de la résonance atomique. Intuitivement, on peut donc imaginer qu'un photon décalé hors de résonance par effet Doppler puisse parcourir dans le milieu une distance bien plus grande qu'un photon résonant. En pratique cependant, le maximum d'extinction d'un atome en mouvement est également décalé par effet Doppler. Le profil d'absorption¹ $\Psi(\omega)$, inverse du libre parcours moyen l_{sc} à une fréquence ω est donc obtenu par une moyenne sur la distribution de vitesse des atomes :

$$\Psi(\omega) = \frac{1}{l_{sc}(\omega)} = n_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma_{sc} \left(\omega \left[1 - \frac{v_x}{c} \right] \right) P_{M,1}(v_x) dv_x \quad (\text{V.2})$$

n_0 est la densité d'atomes, $P_{M,1}$ la distribution de Maxwell des vitesses atomiques selon une direction x , et σ_{sc} la section efficace de diffusion d'un atome évaluée à la pulsation $\omega(1 - \frac{v_x}{c})$ de la lumière dans le référentiel de repos de l'atome.

Calcul de la distribution de la taille des pas : principe

Finalement, il est nécessaire de calculer la distribution de la taille des pas pour déterminer si sa forme est qualitativement modifiée par les mécanismes de redistribution en fréquence. D'après la loi de Beer-Lambert, la probabilité $P(x, \omega)$ que possède un photon de pulsation ω de parcourir une distance x dans le milieu avant d'être rediffusé s'écrit :

$$P(x, \omega) = \frac{1}{l_{sc}(\omega)} e^{-\frac{x}{l_{sc}(\omega)}}, \quad (\text{V.3})$$

1. A l'instar de ce qui est fait dans la littérature, on distinguera dans ce chapitre des phases d'émission et d'absorption dans le processus de diffusion inélastique.

La distribution P régissant la taille d'un pas n est alors obtenue en moyennant ce résultat sur le spectre² $\Theta(\omega)$ de la lumière émise lors de l'évènement de diffusion précédent :

$$P(x) = \int_0^{+\infty} \Theta(\omega) P(x, \omega) d\omega \quad (\text{V.4})$$

Cette distribution n'est identique pour tous les pas de la marche aléatoire de la lumière que si le spectre d'émission $\Theta(\omega)$ est indépendant de l'évènement de diffusion considéré, et notamment de la fréquence du photon lors du pas $n - 1$. C'est l'hypothèse de **redistribution complète de fréquence** (en anglais, Complete Frequency Redistribution ou CFR). On peut remarquer immédiatement que cette hypothèse n'est pas compatible avec la description de l'élargissement Doppler réalisée précédemment. Nous reviendrons sur cette question par la suite. Notons pour l'instant que l'hypothèse de CFR est bien vérifiée lorsque dominant certains mécanismes d'élargissement collisionnel [Molisch 1998].

Cherchons dans un premier temps une indication qualitative sur l'impact des phénomènes de redistribution en fréquence sur la distribution $P(x)$. Pour cela, on suppose le profil d'émission proportionnel au profil d'absorption – c'est le cas dans un milieu infini à l'équilibre thermodynamique [Holstein 1947] – et on fait l'hypothèse de redistribution complète de fréquence. Dans la limite où la section efficace de diffusion des atomes est décrite par une fonction lorentzienne de largeur Γ très faible devant la largeur Doppler³, le profil d'absorption tend vers une gaussienne :

$$\Psi(\omega) = \frac{1}{l_0} \frac{\pi \Gamma}{2} \frac{1}{\sqrt{2\pi} \Delta\omega_D} e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega_D} \right)^2}. \quad (\text{V.5})$$

$l_0 = 1/(n_0 \sigma_{sc}(\omega_0))$ est le libre parcours moyen que possèderait un photon résonant si tous les atomes étaient au repos (température nulle). En notant k_B la constante de Boltzmann, T la température, m la masse des atomes du gaz, on peut écrire l'écart type $\Delta\omega_D$ de ce profil Doppler sous la forme :

$$\Delta\omega_D = \frac{\omega_0}{c} \sqrt{\frac{k_B T}{m}} = \frac{\omega_0}{c} \frac{v_{mp}}{\sqrt{2}} \quad (\text{V.6})$$

où l'on a introduit la vitesse la plus probable des atomes, $v_{mp} = \sqrt{\frac{2kT}{m}}$. Par hypothèse,

$$\Theta(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \Delta\omega_D} e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega_D} \right)^2} \quad (\text{V.7})$$

2. $\Theta(\omega)$ est plus précisément le profil d'émission normalisé de l'atome : son intégrale sur les fréquences vaut 1, et il a la dimension de l'inverse d'une pulsation.

3. C'est à dire lorsque $P_{M,1}(v_x)$ peut être remplacé par une constante dans l'équation V.2.

En injectant ces profils d'émission et d'absorption dans l'équation V.4, on en déduit la distribution de la taille des pas (voir figures V.1 et V.2), dont le comportement asymptotique vérifie [Holstein 1947, Pereira 2004] :

$$P(x) \sim \frac{1}{x^2 \sqrt{\ln(x/l_0)}} \quad (\text{V.8})$$

Elle possède donc un second moment divergent de sorte que, dans le cadre des hypothèses effectuées, le transport de la lumière dans une vapeur atomique relève de la diffusion anormale. Qui plus est, la distribution obtenue vérifie les hypothèses du théorème de la limite centrale généralisé (equation B). Si l'on néglige les aspects temporels⁴, on peut donc décrire le transport de la lumière résultant en termes de vols de Lévy. Notons qu'ici :

$$P(x) = O(x^{-2}) \quad (\text{V.9})$$

de sorte que le libre parcours moyen est toujours défini⁵.

Ce résultat est l'élément déclencheur du travail présenté par la suite qui vise à mesurer, dans une situation réelle, cette distribution de la taille des pas.

V.2 Mesure de la distribution P de la taille des pas

V.2.1 Dispositif expérimental

L'originalité principale de notre projet repose sur un dispositif expérimental simple mais astucieux permettant d'effectuer une mesure directe de la distribution $P(x)$ régissant la taille des pas réalisés par la lumière dans une vapeur atomique (figure V.3 et V.4). Une diode laser en cavité étendue, asservie via un montage d'absorption saturée sur la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ de la raie D2 du rubidium 85 fournit un faisceau de puissance 11mW et de waist 2mm. La largeur spectrale de ce laser n'a pas été mesurée, mais une largeur spectrale typique inférieure à 1 MHz a été obtenue pour des dispositifs similaires [Fauquembergue 2004]. De ce laser, on prélève un faisceau de puissance 0.5mW

4. Notamment lorsque l'on s'intéresse au régime stationnaire

5. Ce n'est pas systématiquement le cas. Par exemple, pour des profils d'émission et d'absorption Lorentziens, nous aurions obtenu [Pereira 2004] :

$$P(x) \sim \frac{1}{x^{\frac{3}{2}}} \quad (\text{V.10})$$

ce qui implique une divergence du libre parcours moyen lui même.

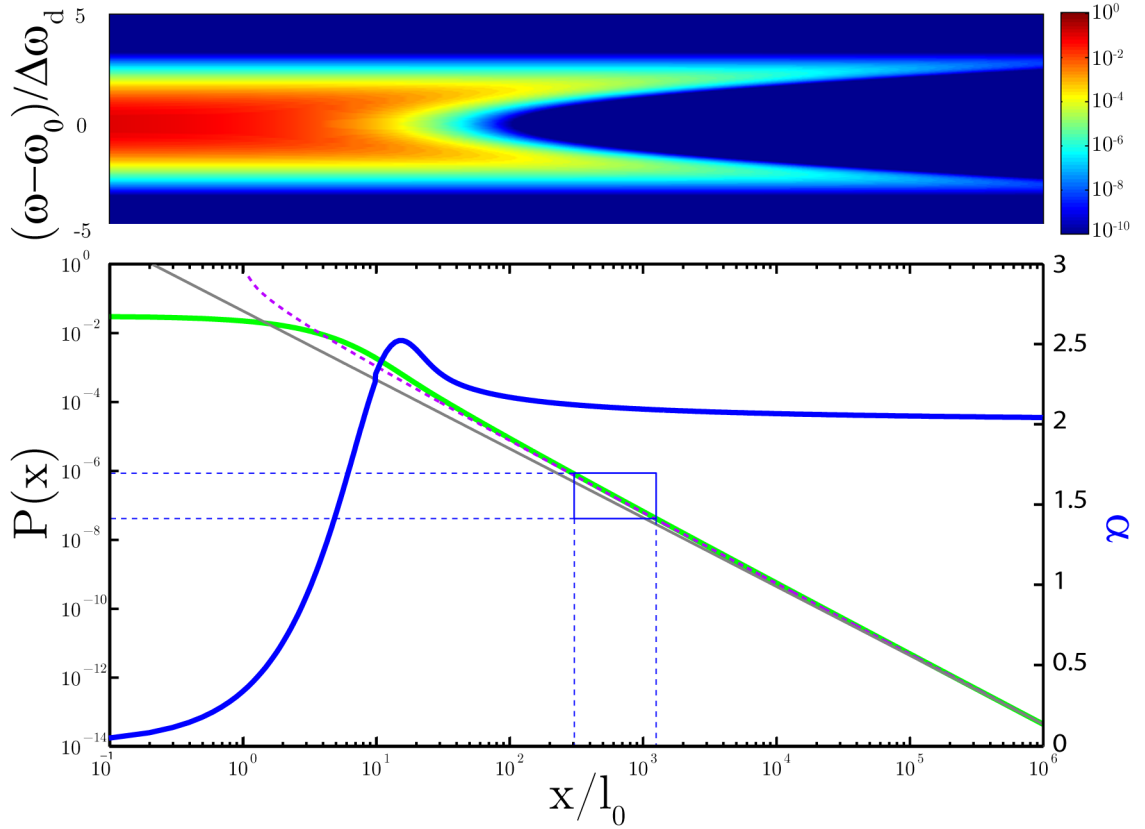


Figure V.1 – **En bas : Distribution de la taille des pas** (vert continu), en échelle logarithmique sur les deux axes, estimée numériquement pour des profils d'émission et d'absorption gaussiens selon l'expression V.4. Elle est comparée à son équivalent asymptotique (pointillés violets) tel que donné par l'équation V.8 et à une à une loi de puissance $1/x^2$ (ligne grise). Notons qu'une loi de puissance présente l'aspect d'une droite en échelle log-log. Le cadre bleu représente la fenêtre de mesure typique accessible expérimentalement. En bleu continu, on a enfin représenté la pente locale de la distribution de la taille des pas tracée en échelle log-log, qui nous permet d'estimer le coefficient α de la loi de puissance $x^{-\alpha}$ approchant le mieux la distribution P . **En haut : Evolution du profil spectral de la lumière en fonction de la distance x parcourue dans le milieu.** On constate que les pas longs sont assurés par les photons décalés en fréquence par rapport à la résonance atomique.

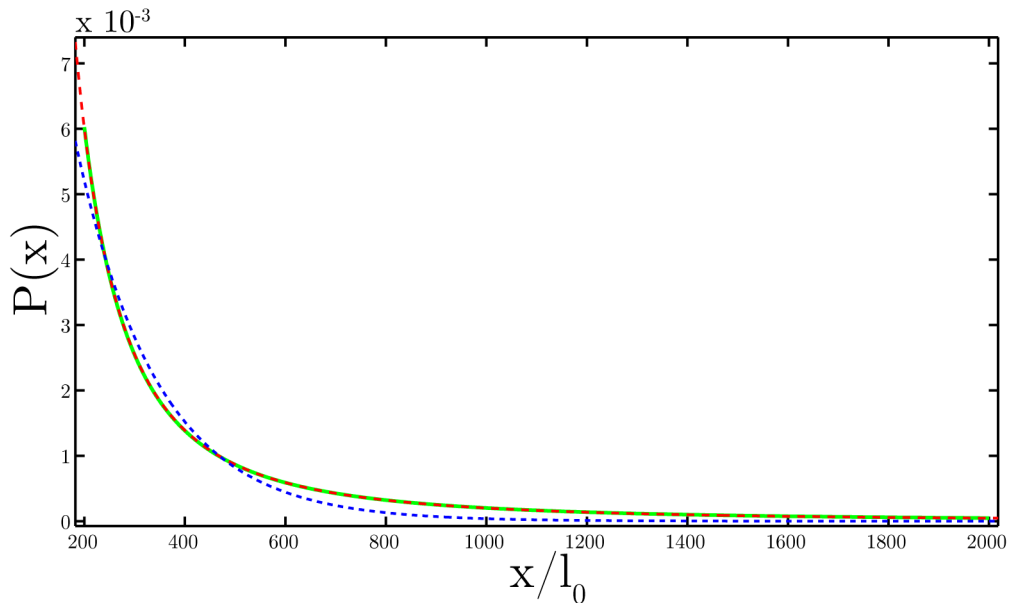


Figure V.2 – **Distribution de la taille des pas** (vert continu) estimée numériquement pour des profils d'émission et d'absorption gaussiens, et tracée dans la fenêtre accessible expérimentalement. Elle est comparée à un ajustement par une loi exponentielle (bleu pointillé) et par une loi de puissance (rouge pointillé) $x^{-\alpha}$, avec $\alpha = 2.112 \pm 0.001$ (intervalle de confiance à 95%), réalisés par méthode des moindres carrés. On constate le bon accord entre le modèle en loi de puissance et la distribution calculée numériquement.

qui éclaire une première cellule cylindrique (18mm de diamètre, 20mm de long) à température ambiante $T_0 = 20^\circ\text{C}$ contenant un mélange naturel des isotopes du rubidium (^{85}Rb : 72.17%, ^{87}Rb : 27.83%) [Steck 2008].

Dans une telle cellule de rubidium, une vapeur est à l'équilibre avec une goutte de rubidium solide. La densité d'atomes dans la cellule est déterminée par la pression de vapeur saturante du rubidium, qui au voisinage de T_0 présente une dépendance vis à vis de la température proche d'une exponentielle et gagne un ordre de grandeur lorsque la température croît de 25°C . En ajustant finement la température d'une cellule, on peut donc modifier significativement la densité d'atomes et par conséquent le libre parcours moyen de diffusion pour la lumière résonante $l(\omega_0)$, tout en influençant de façon mineure la largeur Doppler $\Delta\omega_D$. A $T_0 = 20^\circ\text{C}$, la densité d'atomes dans la première cellule est voisine de $9 \times 10^{15}\text{m}^{-3}$, et le libre parcours moyen de la lumière résonante vaut 70mm. Par conséquent, cette cellule possède dans les différentes directions une épaisseur optique d'au plus 0.25, ce qui nous garantit que les photons y subissent au plus une diffusion, avec une incertitude sur la position faible devant $l(\omega_0)$.

Du rayonnement diffusé dans cette première cellule, on extrait à l'aide de deux diaphragmes espacés de 12cm un faisceau de diamètre 2mm se propageant dans une direction orthogonale au laser initial. Ce faisceau traverse ensuite une seconde cellule de rubidium, cylindrique (25 mm de diamètre, 75 mm de long), avec un angle d'environ 10° par rapport à l'axe de la cellule pour éviter que les réflexions sur la face de la cellule ne se

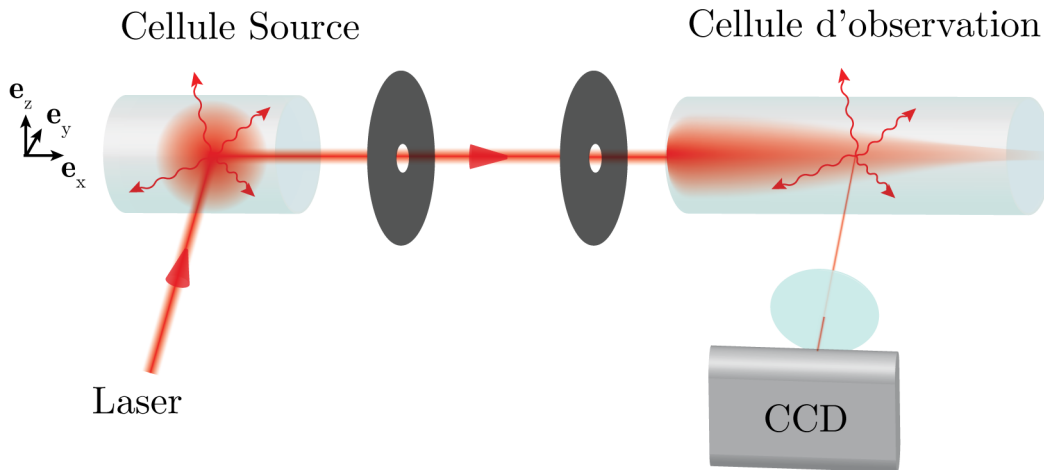


Figure V.3 – **Dispositif expérimental** (configuration C2). Un faisceau laser éclaire selon \mathbf{e}_y une première cellule “source” contenant une vapeur de rubidium où les photons incidents sont diffusés au plus une fois. Un pinceau de lumière diffusée se propageant dans une direction orthogonale \mathbf{e}_x est ensuite sélectionné par deux diaphragmes, et envoyé sur une seconde cellule de rubidium, dite d’observation. Enfin, le rayonnement de fluorescence de cette seconde cellule est imagé sur une caméra CCD refroidie. L’intensité détectée selon l’axe du faisceau incident est directement proportionnelle à la distribution de la taille des pas $P(x)$.

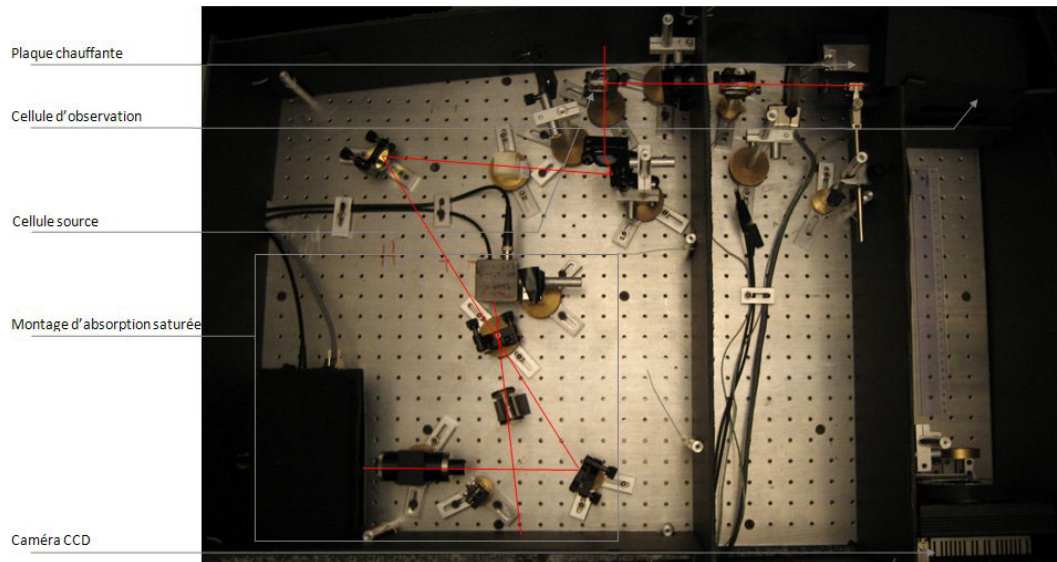


Figure V.4 – Photographie du dispositif expérimental. Le cloisonnement de l'expérience permet de minimiser la quantité de lumière parasite pouvant parvenir jusqu'au capteur (en bas à droite).

superposent au faisceau incident. Cette seconde cellule est montée sur une plaque chauffante, qui permet d'ajuster sa température par ailleurs mesurée via un thermocouple- en pratique, on se limite à une température de 50°C , pour éviter d'endommager les protections noires qui enveloppent les faces non utilisées de la cellule et évitent les réflexions parasites. On peut ainsi régler le libre parcours moyen de la lumière résonante, de 70mm à 20°C à 5mm à 47°C .

Finalement, on image le rayonnement de fluorescence de la cellule d'observation à l'aide d'une lentille simple de focale 50mm et de diamètre 1 pouce, située à environ 50cm de la cellule d'observation, et d'une caméra CCD refroidie. Ce système optique très simple collecte la lumière diffusée dans un angle solide limité et n'est donc pas optimal pour le flux disponible pour la détection. En revanche, il permet de supprimer tout effet de vignettage et d'obtenir une excellente planéité de l'image⁶. La caméra CCD utilisée, une Apogée AP2P, est munie d'un capteur Kodak KAF-1602E-1 de 1024×1056 pixels, avec une efficacité quantique à 780nm de 60% et une dynamique de 14 bits. Il est refroidi à environ -6°C par un module Peltier. Une caractérisation plus complète de cette caméra CCD (biais, bruit de lecture,...) est disponible dans [Gattobigio 2002]. Notons enfin que chaque pixel sur l'image réalisée correspond à une distance de $53.8\mu\text{m}$ dans la cellule d'observation. La figure V.5 présente quelques images obtenues via ce dispositif.

6. L'angle solide dans lequel est collectée la lumière émise par une source située dans le plan de la cellule d'observation varie selon la position de l'émetteur ; dans notre configuration, cependant, l'écart entre l'intensité au centre et au bord de l'image créé par les effets d'angle solide pour une source parfaitement homogène ne dépasse pas les 2×10^{-4}

Supposons la densité d'atomes dans la cellule d'observation suffisamment faible pour être en régime de diffusion simple. Alors l'intensité détectée sur l'axe du faisceau au point d'abscisse x est proportionnelle au nombre de photons diffusés une première fois dans la cellule source, puis ayant parcouru une distance x dans la cellule d'observation avant d'être rediffusés. Finalement, une coupe de l'intensité détectée selon l'axe du faisceau incident (figure V.8) nous donne la distribution de la taille des pas $P(x)$ que nous cherchons à mesurer.

En pratique, cependant, si la densité d'atomes dans la cellule est trop faible, l'atténuation du faisceau balistique n'est pas suffisante pour que l'on puisse déterminer son comportement - autrement dit, la largeur de la fenêtre d'observation représentée sur la figure V.1 diminue, et son centre est décalé vers les basses valeurs de x/l_0 . Il est donc nécessaire de rechercher un compromis sur la densité d'atomes, de sorte que la contribution de la diffusion multiple au signal détecté n'est plus négligeable. Nous verrons au paragraphe suivant comment corriger cet effet.

Nous n'avons décrit ci-dessus que l'une des configurations (C2) expérimentales possibles. En envoyant directement un laser résonant dans la cellule d'observation, on peut observer son atténuation exponentielle caractéristique d'une loi de Beer-Lambert, et en déduire le libre parcours moyen de la lumière résonante (dispositif C1). L'équation V.2 nous permet alors d'obtenir la densité d'atomes dans la cellule avec une excellente précision.

Une dernière configuration (C3) expérimentale nous permet enfin de préparer des photons ayant subi plusieurs événements de diffusion, avant de leur faire réaliser un pas supplémentaire dont on mesure la taille (voir figure V.5). Dans ce cas, notre laser éclaire une première cellule de rubidium (diamètre 18mm, longueur 30mm) chauffée à 36°C , qui possède selon son axe long une épaisseur optique de 2.5. Les photons y subissent en moyenne 4 événements de diffusion, avant que ceux qui se propagent dans une direction spécifique ne soient sélectionnés et envoyés vers notre dispositif précédent de mesure de la taille des pas - autrement dit, vers la cellule source. Dans cette configuration, le flux disponible pour la détection est extrêmement faible, de l'ordre de 0.5 photons par pixel et par heure dans les zones de l'image les plus éloignées de la source. Nous allons voir maintenant comment exploiter les images correspondantes.

V.2.2 Traitement des images

Prétraitement

L'exploitation des images réalisées passe par un prétraitement permettant d'éliminer les biais et bruits reproductibles liés à l'imagerie et à l'électronique de la caméra, mais aussi certains artefacts non reproductibles. Ces opérations de prétraitement sont particulière-

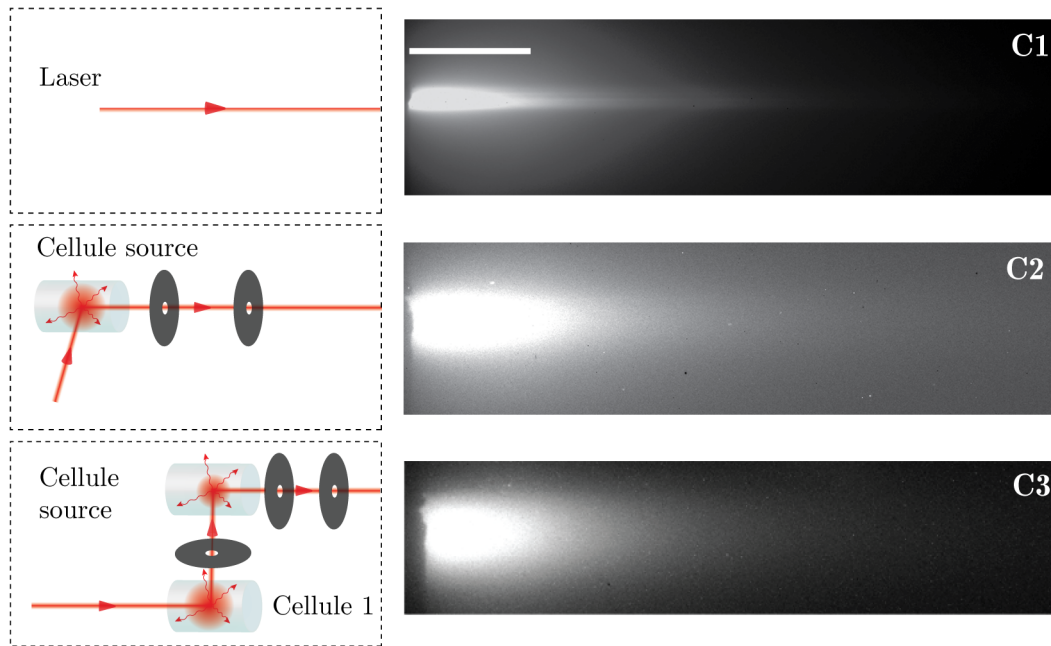


Figure V.5 – Images obtenues dans les différentes configurations expérimentales (après traitement). **C1.** Lorsqu'un laser résonant (asservi sur la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$) éclaire directement la cellule d'observation. **C2.** Lorsque le faisceau incident provient de la diffusion simple d'un laser dans une première cellule source. **C3.** Lorsque des photons ayant subi plusieurs évènements de diffusion dans une première cellule sont utilisés, à la place du laser, pour éclairer la cellule source précédente. Pour ces trois images, la température de la cellule d'observation est voisine de 41°C , ce qui correspond à une densité d'atomes dans la cellule de $5 \cdot 10^{16}\text{m}^{-3}$ et à un libre parcours moyen de 12 mm pour la lumière résonante (trait blanc). Les images C1 et C2 sont obtenues après une exposition de 30 minutes et la soustraction d'une image de noir. L'image C3 est obtenue à partir de six images brutes correspondant à une exposition de 5h chacune, et de quatre images de noir correspondantes, selon le procédé détaillé au paragraphe V.2.2. La petite zone sombre visible à gauche de chaque image est liée à la présence d'un cache, qui permet d'occulter une éventuelle réflexion directe du faisceau incident sur le verre de la cellule d'observation, et d'éviter ainsi un effet d'éblouissement.

ment délicates pour les images obtenues dans la dernière configuration expérimentale - à trois cellules - dans des conditions de flux extrêmement faibles.

L'intensité I obtenue lors de l'acquisition d'une image brute s'écrit en fonction du signal S délivré par un système idéal :

$$I(\mathbf{v}) = S(\mathbf{v}) \cdot \underbrace{[r(\mathbf{v}) + \delta r(\mathbf{v})]}_{\text{Sensibilité inhomogène}} + \underbrace{b(\mathbf{v}) + \delta b(\mathbf{v})}_{\text{Bruit électronique}} + \underbrace{d(\mathbf{v}, T) + \delta d(\mathbf{v}, T)}_{\text{Bruit thermique}} + \underbrace{\delta p(\mathbf{v})}_{\text{Bruit sources}} \quad (\text{V.11})$$

où \mathbf{v} désigne la position sur l'image, T la température. r , b et d sont des biais moyens, reproductibles d'une image à l'autre :

- r décrit les différences de réponse d'un pixel à l'autre du fait de l'inhomogénéité du capteur et du système optique. Afin de mesurer et corriger ce biais, on réalise une "Plage de lumière uniforme" (PLU, ou encore flat field), qui correspond à l'image d'un écran éclairé uniformément. La réalisation d'un tel écran est délicate.
- b décrit un décalage lié à l'électronique de la caméra, appelé bruit de lecture. Il peut être isolé via une image d'offset, obtenue en réalisant une capture avec un temps de pose nul.
- d correspond aux charges thermiques accumulées sur un pixel durant le temps de pose. Ce biais est corrigé en soustrayant au signal brut une image de noir (ou dark), qui correspond à l'image vue par la caméra en l'absence de source, lors d'une exposition de même durée que celle utilisée pour obtenir l'image à traiter - en fait, on obtient ainsi la somme $d + b$. Elle est facile à réaliser, puisqu'il suffit de plonger la caméra dans l'obscurité. Ici, on se contente de décaler la fréquence du laser hors des bandes d'absorption Doppler lors de l'acquisition de l'image de Dark : on détectera ainsi les réflexions parasites éventuelles.

En règle générale, l'image finale est obtenue en réalisant les opérations suivantes :

$$Image_{finale} = \frac{Image_{brute} - Image_{de\ noir}}{Image_{de\ PLU} - Image_{d'offset}}$$

Dans notre cas, cependant, la configuration du système optique utilisé garantit $r = 1 \pm 2.10^{-4}$, ce qui rend non pertinente toute correction de plage de lumière uniforme.

δr , δb et δd sont des bruits identiques à ceux décrits précédemment, mais fluctuants et donc non éliminables via le traitement d'image. Le plus important d'entre eux à température ambiante est le bruit thermique δd . Son impact est limité par un système de refroidissement Peltier qui maintient la température de la caméra à $-6^\circ C$. δp , enfin, décrit le bruit lié aux sources présentes dans le système. Ici, il est principalement lié au bruit de photons, non éliminable, et aux fluctuations du nombre d'électrons détectés liées à l'impact direct de rayons cosmiques sur le capteur CCD [Groom 2002]. Les rayons cosmiques créent localement des variations importantes de l'intensité détectée, mais le nombre d'impacts visibles sur une image après une exposition de quelques heures reste limité. Ainsi, si l'on réalise plusieurs images, il est peu probable que plusieurs d'entre

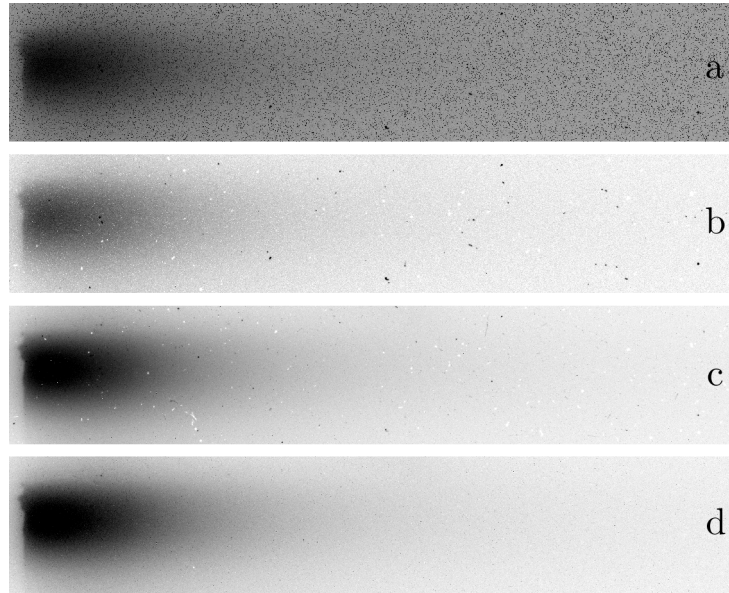


Figure V.6 – **Images obtenues en conditions de faible flux - configuration C3 - via différents processus de traitement.** Les niveaux de gris ont été inversés pour une meilleure visibilité. **a.** Image brute, obtenue en un temps d'exposition de 5h. **b.** Résultat de la soustraction directe d'une image brute et d'une image de noir. **c.** Moyenne de 6 images brutes (30h d'exposition au total), à laquelle à été soustraite la moyenne de quatre images de noir. **d.** Signal obtenu par compositage médian de 6 images brutes, puis soustraction d'une image de noir mediane.

elles comportent des impacts de rayons cosmiques aux mêmes positions. On peut donc obtenir une image nettoyée des impacts de rayons cosmiques en retenant pour chaque pixel la valeur médiane de l'intensité (voir figure V.6). Le bruit thermique, cependant, est supprimé moins efficacement que via une moyenne directe des images. Globalement, le rapport signal sur bruit (SNR) obtenu reste suffisant pour l'exploitation des images, y compris dans les zones de la cellule d'observation les plus éloignées de la source (figure V.7).

Détermination de $P(x)$

Si l'on néglige la diffusion multiple dans la cellule d'observation, il est possible d'estimer la distribution de la taille des pas via une simple coupe de l'image le long de l'axe du faisceau incident. En pratique, on somme les signaux obtenus sur 30 (expérience à deux cellules) à 60 (configuration à 3 cellules) lignes du capteur CCD (1.6 à 3.2 mm dans la cellule)V.6, puis on moyenne sur le même nombre de pixels selon la direction x . Cette sommation a deux effets :

- Elle améliore le rapport signal/bruit - d'un facteur 60 pour une valeur de l'intensité obtenue par moyenne sur un carré de 60×60 pixels.

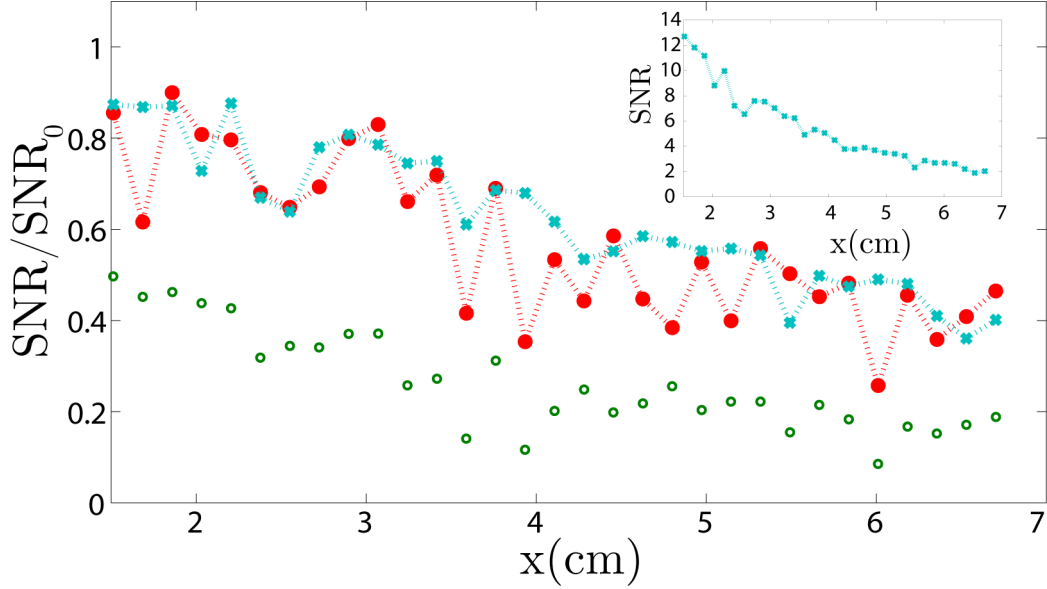


Figure V.7 – **Rapport signal sur bruit (SNR) le long de l'axe de la cellule**, en fonction de la distance à l'entrée de la cellule d'observation. Il est donné par le ratio de l'écart type et de la moyenne de la distribution d'intensité dans un carré de 60×60 pixels. La valeur obtenue est rapportée au rapport signal sur bruit idéal lié au seul bruit de photons SNR_0 . On compare le résultat de différents traitements utilisés sur la figure V.6 : simple soustraction d'une image de signal et d'une image de noir (cercles verts, cas b), moyenne sur plusieurs images (cercles rouges pleins, cas c) ou compositage median (croix bleues, cas d). On constate que le rapport signal sur bruit est plutôt meilleur dans ce dernier cas, et est proche de la limite imposée par le bruit de photons. **Insert** : Rapport signal sur bruit obtenu dans le cas d, sans normalisation.

- Elle permet de compenser les effets liés à la divergence du faisceau balistique (voir figure V.8).

Sur les images obtenues via notre dispositif expérimental (figure V.5), l'intensité mesurée hors de l'axe du faisceau balistique est non nulle. C'est le signe que la diffusion multiple ne peut être totalement négligée, et influence la mesure de l'intensité sur l'axe du faisceau balistique. De fait, à $41^\circ C$, le libre parcours moyen des photons résonants est de 12mm, comparable au rayon de la cellule d'observation (12.5mm). L'impact de la diffusion multiple peut cependant être corrigé. L'intensité mesurée selon l'axe du faisceau balistique peut être mise sous la forme :

$$I(x, 0) = I_1(x, 0) + I_{n \geq 2}(x, 0) , \quad (V.12)$$

où I_1 est une intensité due à la diffusion simple des photons balistiques, $I_{n \geq 2}$ celle due à la diffusion multiple. Légèrement hors axe, cependant, seule cette dernière contribution subsiste. Si l'on suppose une faible variation de $I_{n \geq 2}(x, d)$ sur une distance d petite devant

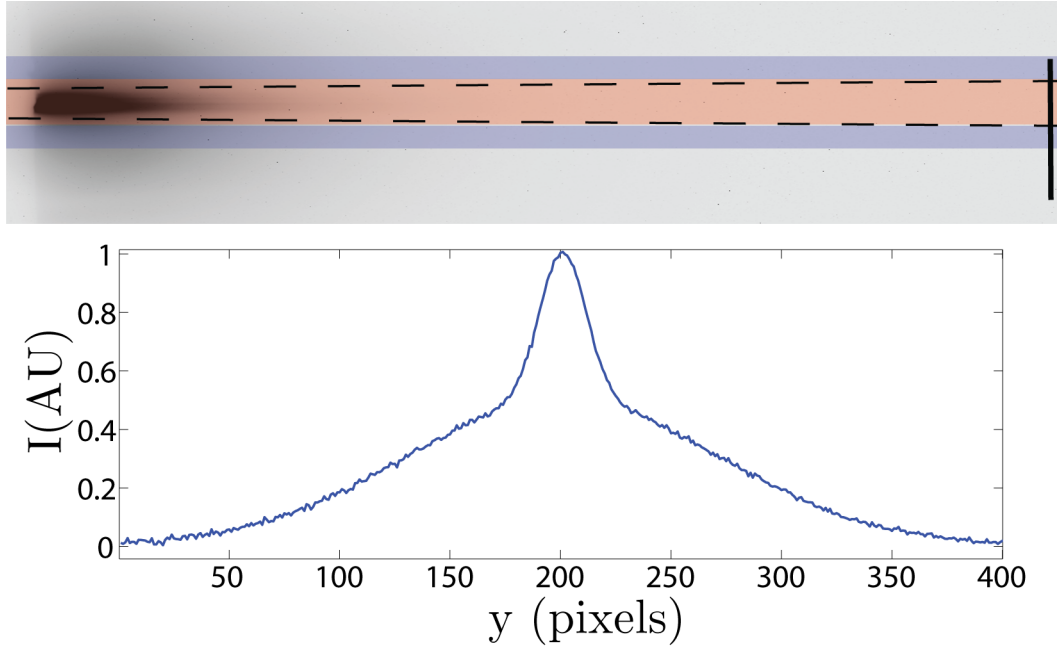


Figure V.8 – **Principe de traitement des images.** **En haut.** Image de fluorescence de la cellule d'observation (couleurs inversées, configuration C1). L'évolution de la fluorescence sur l'axe et hors axe est obtenue par une moyenne sur 60 lignes (respectivement les rectangles rouges et bleus). Les traits pointillés noirs représentent la taille maximale du faisceau balistique, déterminée par les diaphragmes. Notre montage a notamment le mérite permettre de limiter grandement cette divergence par rapport à ce qu'elle serait, pour des épaisseurs de gaz traversées équivalentes, si l'on utilisait une cellule unique allongée de rubidium. Pour référence, le trait plein à droite de l'image représente le libre parcours moyen des photons résonants. **En bas.** Coupe verticale de l'image, qui fait bien apparaître un pic central lié à la diffusion simple du laser incident, et une structure plus large due à la diffusion multiple.

le libre parcours moyen des photons résonants, c'est à dire $I_{n \geq 2}(x, d) \simeq I_{n \geq 2}(x, 0)$ pour $d \ll l(\omega_0)$, on peut utiliser la mesure hors axe pour soustraire la contribution de la diffusion multiple à l'intensité mesurée sur l'axe. Ainsi :

$$P(x) \propto I(x, 0) - I(x, d) \quad (\text{V.13})$$

Ce processus de correction est illustré sur la figure V.8. Des simulations de Monte-Carlo pour des atomes à deux niveaux ont permis de valider cette procédure de correction (figure V.9). Ces simulations ont été conduites par M. Chevrollier, et les détails techniques concernant leur implémentation sont disponibles dans [Chevrollier 2010]. Nous verrons également au paragraphe suivant que la forme de la distribution $P(x)$ estimée par cette méthode reste invariante pour des mesures effectuées avec différentes densités d'atomes dans la cellule d'observation, et donc pour différents niveaux de diffusion multiple (figure V.10).

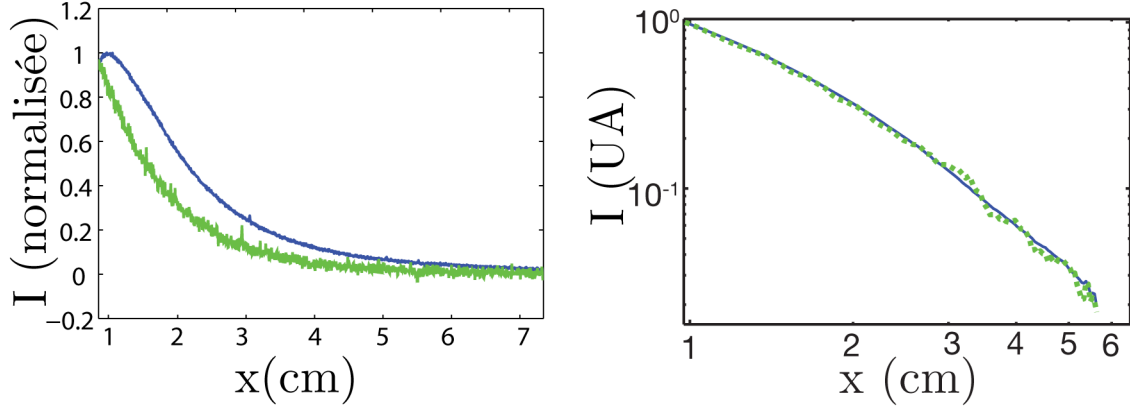


Figure V.9 – **Résultats du processus de correction de la diffusion multiple.** **A gauche** : Intensité totale sur l'axe du faisceau balistique (bleu foncé) en configuration C2, et estimation de $P(x)$ obtenue par notre processus de correction de la diffusion multiple (vert clair). **A droite** : Validation du processus de correction de la diffusion multiple par simulations de Monte-Carlo : Intensité détectée sur l'axe de la cellule du fait des photons balistiques diffusés une fois seulement (bleu continu), comparée au résultat de la soustraction du signal sur l'axe et hors axe (vert pointillé). On note la bonne correspondance entre ces deux signaux.

Le profil d'intensité brut, obtenu sans correction, est visible sur la figure V.9. Nous ne l'étudierons pas en détail ici. Notons simplement que l'intensité du rayonnement de fluorescence croît légèrement au voisinage de $x = 0$ lorsque l'on s'éloigne de la source. Un comportement qualitativement similaire pour l'intensité diffuse est obtenu en appliquant l'équation de la diffusion à un échantillon plan infini, à condition de considérer comme sources les premières diffusions des photons du faisceau balistique [Bertolotti 2007].

V.2.3 Taille P_1 du premier pas

A partir des images réalisées dans la configuration à deux cellules (C2), on obtient la distribution de la taille du premier pas réalisé par les photons initialement résonants diffusés à 90° de leur direction d'incidence. Le résultat correspondant est présenté sur la figure V.10. Un ajustement linéaire de la distribution $P(x)$ tracée en échelle log-log montre que, dans la fenêtre accessible expérimentalement et pour des x suffisamment grands, $P(x)$ se comporte comme une loi de puissance :

$$P(x) \sim x^{-\alpha} \text{ avec } \alpha = 2.41 \pm 0.12 \quad (\text{V.14})$$

Ainsi, la distribution mesurée possède un second moment divergent. En conséquence, un modèle diffusif standard ne peut décrire correctement la propagation de la lumière dans une vapeur atomique. Si l'hypothèse de redistribution complète de fréquence était

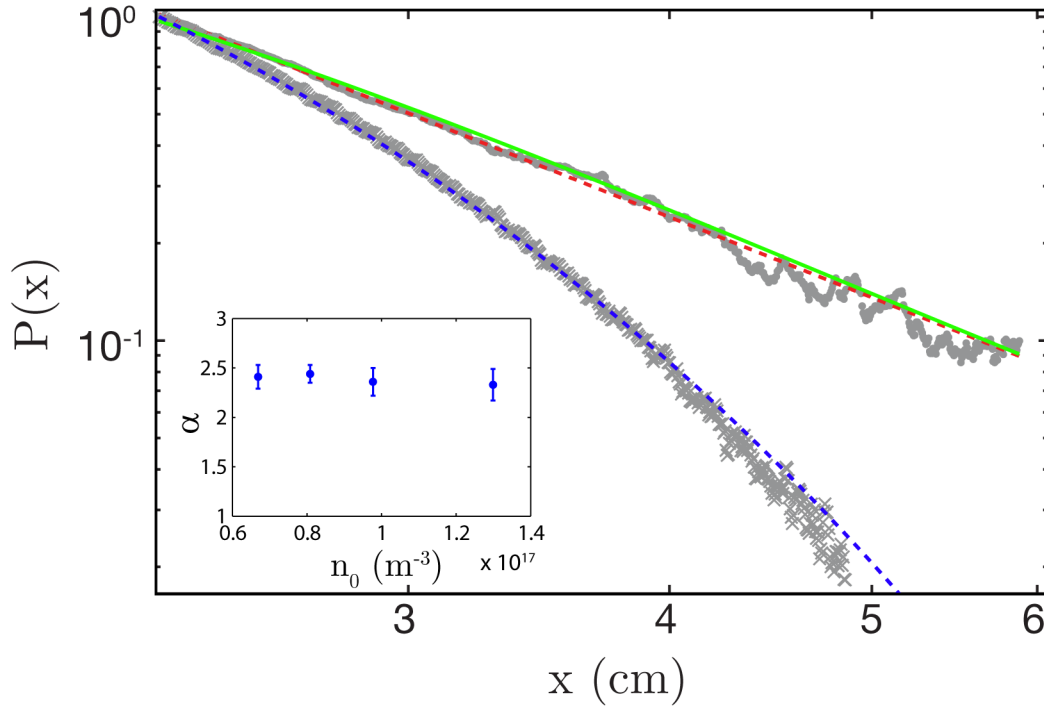


Figure V.10 – **Distribution de la taille des pas $P(x)$, en échelle log-log.** Pour un laser incident résonant et quasi-monochromatique (croix), cette distribution est bien décrite par une exponentielle décroissante (fit bleu pointillé). En revanche, pour un rayonnement incident au spectre élargi par effet Doppler lors d'une première diffusion dans la cellule source (configuration C2), la distribution $P(x)$ obtenue présente en échelle log-log un aspect linéaire caractéristique d'une loi de puissance (cercles). Un fit (ligne rouge pointillée) par une loi de puissance permet d'obtenir : $P(x) \sim x^{-\alpha}$, avec $\alpha = 2.41 \pm 0.12$. Enfin, on constate l'excellent accord entre le modèle microscopique présenté au paragraphe V.3 (ligne verte continue) et l'expérience. **Insert** : Coefficient α mesuré pour différentes densités d'atomes n_0 dans la cellule d'observation. Le résultat est quasi-constant, ce qui démontre l'efficacité du processus de correction de la diffusion multiple.

vérifiée, et qu'en conséquence la loi mesurée régissait la taille de tous les pas de la marche aléatoire des photons, alors ce résultat permettrait de classer leur transport dans la catégorie des vols de Lévy.

Cependant, ces conclusions doivent être pondérées. Nous l'avons vu, l'élargissement Doppler tend à redistribuer la fréquence d'un photon autour de sa fréquence initiale, et induit donc un effet mémoire non compatible avec l'hypothèse de redistribution complète de fréquence. D'autre part, le résultat de la mesure de $P(x)$ est significativement différent de la prédiction théorique $\alpha = 2.11$ (dans la fenêtre accessible expérimentalement, voir figure V.1) réalisée pour des profils d'émission et d'absorption gaussiens. Nous allons maintenant discuter cet écart.

V.3 Modèles de redistribution en fréquence et calcul de P_1

Avant de discuter ou d'étendre la portée des résultats précédents, nous pouvons simplement chercher à rendre compte, par un modèle *ab initio*, de la distribution P_1 de la taille du premier pas – et nous assurer ainsi de la pertinence des modèles microscopiques à notre disposition. Pour calculer P_1 , il nous suffit d'après l'équation V.4 de déterminer le profil d'absorption Ψ de notre vapeur de rubidium, et le spectre $\Theta_{1,90^\circ}$ de la lumière diffusée selon \mathbf{e}_x , à 90° de la direction \mathbf{e}_y du laser incident dans la cellule source :

$$P_1(x) = \int_0^{+\infty} d\omega \Theta_{1,90^\circ}(\omega) \Psi(\omega) e^{-\Psi(\omega)x} \quad (\text{V.15})$$

Plusieurs phénomènes influencent la forme des profils d'émission et d'absorption :

- **La diffusion inélastique**, liée à des échanges d'énergie entre photons par l'intermédiaire des atomes (saturation), à un changement d'état interne de l'atome, ou encore à un échange d'énergie avec un autre atome du gaz suite à une collision lors du processus de diffusion (**élargissement collisionnel**). Aux densités faibles régnant dans nos cellules de rubidium, l'effet des collisions est négligeable [Hill 1982]. Dans la suite, on se place dans la limite de faible saturation⁷, et l'on considère dans un premier temps un gaz d'atomes à deux niveaux, de sorte que la diffusion dans leur référentiel de repos est nécessairement élastique.
- **L'élargissement naturel** : même au repos, les atomes peuvent diffuser des photons non résonants du fait de la largeur Γ finie de l'état excité. Ce phénomène modifie le profil d'absorption. En revanche, il n'a pas d'impact sur le spectre de la lumière émise, une fois connue la fréquence du photon absorbé.
- **L'élargissement Doppler**, que nous avons déjà décrit. Notons qu'il est caractérisé par une largeur $\Delta\omega_D$ de l'ordre de 220 MHz à température ambiante, grande devant la largeur $\Gamma = 6$ MHz des états excités de la raie D2 du rubidium, de sorte qu'il peut être considéré comme le mécanisme d'élargissement dominant dans notre système.

Finalement, seuls sont à prendre en compte les élargissements naturel et Doppler.

Moyennant ces hypothèses, le profil d'absorption est donné par l'équation V.2 :

$$\Psi(\omega) = \frac{1}{l_{sc}(\omega)} = n_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma_{sc} \left(\omega \left[1 - \frac{v_x}{c} \right] \right) P_{M,1}(v_x) dv_x$$

dans laquelle σ_{sc} est la section efficace de diffusion d'un atome isolé au repos. Le spectre

7. Cette hypothèse est quelque peu abusive pour les atomes de la cellule source de vitesse nulle selon l'axe du laser incident \mathbf{e}_y , éclairés à résonance par un faisceau d'intensité proche de leur intensité de saturation I_{sat} .

d'émission $\Theta_{1,90^\circ}$ obéit quant à lui à :

$$\begin{aligned} \Theta_{1,90^\circ}(\omega) \propto & \int_0^{+\infty} d\omega' \int_{-\infty}^{+\infty} dv_x \int_{-\infty}^{+\infty} dv_y \Theta_0(\omega') \sigma_{sc} \left(\omega' \left(1 - \frac{v_y}{c} \right) \right) \\ & \times P_{M,2}(v_x, v_y) \delta \left(\omega - \omega' \left(1 - \frac{v_y}{c} \right) \left(1 + \frac{v_x}{c} \right) \right) \end{aligned} \quad (\text{V.16})$$

$\Theta_0(\omega')$ est le spectre du laser incident. L'intégrale sur v_y donne la probabilité qu'un atome absorbe un photon de pulsation $\omega_{at} = \omega' \left(1 - \frac{v_y}{c} \right)$ dans son référentiel de repos. L'intégrale sur v_x calcule la probabilité, sachant qu'un photon de pulsation ω_{at} a été absorbé, qu'il soit réémis selon \mathbf{e}_x avec une pulsation $\omega_{at} \left(1 + \frac{v_x}{c} \right)$. $P_{M,2}$ est la distribution de Maxwell-Boltzmann des vitesses selon deux directions⁸ Enfin, la distribution de Dirac dans l'intégrale exprime la conservation de l'énergie durant le processus de diffusion dans le référentiel de repos atomique.

Cas d'une transition infiniment fine

Pour un laser incident monochromatique, et dans la limite où la largeur Γ de la transition atomique est négligeable devant la largeur Doppler, ce spectre d'émission prend la forme gaussienne donnée par l'équation V.7. Ainsi, le modèle simple à l'origine de notre étude, qui suppose des profils d'émission et d'absorption identiques et gaussiens, présente-t-il une certaine pertinence pour décrire nos mesures, bien que l'on ne soit aucunement en régime de redistribution complète de fréquence. Dans ce modèle, et pour les distances x accessibles à la mesure, la distribution $P_1(x)$ est bien décrite par une loi de puissance $x^{-\alpha}$ de paramètre :

$$\boxed{\alpha = 2.112 \pm 0.001} \quad (\text{V.17})$$

Influence de la largeur naturelle

Pour des atomes à deux niveaux de largeur naturelle finie, la section efficace de diffusion est une fonction lorentzienne, dont la largeur est celle de la transition atomique considérée – pour un niveau excité de la raie D2 du rubidium, $\Gamma/2\pi = 6.066$ MHz. Dans ce cas, on peut estimer numériquement la distribution $P_1(x)$ à partir des équations V.16,

8. En notant k_B la constante de Boltzmann, m la masse des atomes, cette distribution à deux vitesses s'écrit :

$$P_{M,2}(v_x, v_y) = \frac{m}{2\pi k_B T} \exp \left[-\frac{m(v_x^2 + v_y^2)}{2k_B T} \right]$$

V.2 et V.15. On prend cette fois-ci en compte la forme lorentzienne du spectre du laser initial, de largeur 1 MHz. Un ajustement linéaire en échelle log-log donne alors :

$$\boxed{\alpha = 2.27 \pm 0.04} \quad (\text{V.18})$$

Le profil d'émission, visible sur la figure V.11, conserve ici une forme proche d'une gaussienne. Le profil d'absorption, en revanche, est la convolution de la distribution gaussienne de vitesse des atomes et d'une section efficace lorentzienne : c'est un profil de Voigt (voir par exemple [Olver 2010]). La lumière fortement désaccordée par rapport à la résonance atomique est donc absorbée bien plus efficacement que dans le cas précédent. Aux distances accessibles dans l'expérience, cela se traduit par une augmentation du paramètre α décrivant la décroissance de la distribution P_1 de la taille des pas. Pour des x plus élevés, on observe plutôt une "troncature" - un effondrement brutal - de cette distribution (figure V.11).

Impact de la différence de température entre les cellules

Dans notre dispositif expérimental, la température de la cellule d'observation ($T_2 = 314\text{K}$) est légèrement supérieure à celle de la cellule source ($T_1 = 293\text{K}$). En conséquence, le profil d'absorption est élargi par rapport au profil d'émission. Cela se traduit par une décroissance accentuée de la distribution P_1 accessible à la mesure ; en prenant en compte cette différence de température, on obtient numériquement :

$$\boxed{\alpha = 2.32 \pm 0.04} \quad (\text{V.19})$$

Impact de la structure multi-niveaux du rubidium

Si l'on prend en compte la structure multi-niveaux du rubidium, l'expression de la section efficace de diffusion est modifiée. En supposant les populations equi-réparties entre les sous-niveaux Zeeman des niveaux hyperfins fondamentaux du rubidium - ce qui dans une vapeur à température ambiante constitue une excellente approximation - il vient :

$$\sigma(\omega) = \frac{\lambda_0^2}{\pi} \sum_{F=2}^3 \sum_{F'=1}^4 \left(\frac{(2F+1)}{\sum_{F_1=2}^3 (2F_1+1)} \right) \frac{\underline{S}_{FF'}}{1 + 4(\omega - \omega_{FF'})^2/\Gamma^2} \quad (\text{V.20})$$

Les coefficients $\underline{S}_{FF'}$ sont les facteurs de transition calculés à partir des coefficients de Clebsch-Gordan et des coefficients de Wigner [Brink 1994, Steck 2008] ; $\omega_{FF'}$ correspond à la fréquence de la transition entre le niveau hyperfin fondamental F et le niveau hyperfin excité F' .

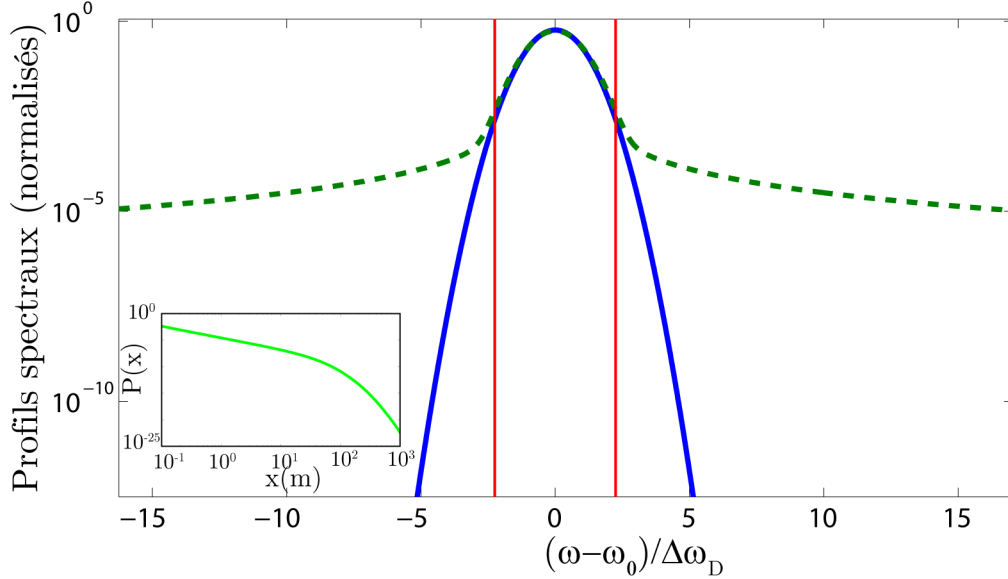


Figure V.11 – **Profils d'émission $\Theta_{1,90^\circ}$ (bleu continu) et d'absorption (vert pointillé)** d'atomes à deux niveaux, de largeur naturelle $\Gamma/2\pi = 6.066$ MHz, à une température $T = 41^\circ\text{C}$ (échelle semi-logarithmique). Les limites rouges encadrent les fréquences pour lesquelles, pour une densité d'atomes correspondant à nos conditions expérimentales, le libre parcours moyen est inférieur à 1m. On constate que dans cette gamme de fréquence, les profils d'émission et d'absorption sont similaires et proches d'une courbe gaussienne. **Insert** : Distribution de la taille des pas calculée avec ces profils, en échelle log-log. Une troncature de P_1 aux grandes distances est clairement visible.

Du fait de l'élargissement Doppler, le laser utilisé excite l'ensemble des transitions du niveau fondamental $F = 3$ vers les niveaux excités. Une partie de la lumière peut subir une diffusion inélastique, l'atome passant alors dans l'état $F = 2$. Le spectre d'émission s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
 \Theta_1(\omega) &\propto \int_0^{+\infty} d\omega' \int_{-\infty}^{+\infty} dv_x \int_{-\infty}^{+\infty} dv_y \Theta_0(\omega') \\
 &\times \frac{\lambda_0^2}{\pi} \sum_{F_1=2}^3 \sum_{F_2=2}^3 \sum_{F'=1}^4 \left(\frac{(2F_1+1)}{\sum_{F=2}^3 (2F+1)} \right) \frac{\underline{S}_{F_1 F'}}{1 + 4(\omega'(1 - \frac{v_y}{c}) - \omega_{F_1 F'})^2 / \Gamma^2} \times \frac{\underline{S}_{F_2 F'}}{(\sum_{F=2}^3 \underline{S}_{F F'})} \\
 &\times P_{M,2}(v_x, v_y) \delta \left(\omega - \omega'(1 - \frac{v_y}{c})(1 + \frac{v_x}{c}) - \omega_{F_1 F_2} \right)
 \end{aligned} \tag{V.21}$$

F_1 et F_2 sont les états fondamentaux initial et final du processus de diffusion, F' le niveau excité intermédiaire, et $\hbar\omega_{F_1 F_2}$ correspond à la différence d'énergie entre les deux niveaux fondamentaux. Le dernier terme de la seconde ligne correspond à la probabilité qu'un photon subisse une diffusion inélastique. Du fait de ce processus, le spectre d'émission des atomes est la superposition de deux pics quasi-gaussiens, et l'écart de pulsation entre

| Situation | α |
|---|---|
| Atomes à 2 niveaux - Transition infiniment fine | 2.112 ± 0.001 (numérique) |
| + Largeur Naturelle | 2.27 ± 0.04 (numérique) |
| + Différence de température entre les cellules | 2.32 ± 0.04 (numérique) |
| + Structure multi-niveaux | 2.45 ± 0.04 (numérique) 2.41 ± 0.12 (mesure) |

Table V.1 – Impact des différents facteurs influençant la valeur du coefficient α de la loi de puissance $x^{-\alpha}$ modélisant au mieux la distribution de la taille du premier pas $P_1(x)$ dans l'intervalle de distances considéré $[2 - 6\text{cm}]$ et à $T = 41^\circ\text{C}$.

leurs maxima vaut $\omega_{F_1 F_2} \sim 3 \text{ GHz}$.

La distribution P_1 calculée à partir de ces expressions est tracée sur la figure V.10. La densité d'atomes qui intervient dans l'expression du profil d'absorption est déterminée par une expérience indépendante - la mesure de l'atténuation d'un laser incident en configuration C1 - de sorte que le modèle ne possède pour seul paramètre ajustable que l'intensité à l'origine. On constate que l'accord entre le modèle et l'expérience est excellent. Un fit de la distribution calculée donne cette fois-ci :

$$\alpha = 2.45 \pm 0.04 \quad (\text{V.22})$$

La largeur naturelle de la transition diffusante, la structure complexe des niveaux d'énergie des atomes diffuseurs, et enfin la différence de température, dans l'expérience, entre la cellule source et la cellule d'observation, apportent des corrections à la forme de la distribution de la taille des pas P_1 par rapport aux prédictions du modèle à l'origine de notre étude. Toutes tendent à accélérer la décroissance de de cette distribution (voir tableau V.1); leur prise en compte permet de très bien décrire les observations expérimentales.

V.4 Régime de diffusion multiple

Le spectre de la lumière diffusée par les atomes est susceptible d'évoluer au cours du processus de diffusion - on peut par exemple imaginer que l'effet Doppler tende à l'élargir toujours plus à chaque pas effectué. Dans de telles conditions, la distribution de la taille des pas évolue en permanence, et la mesure effectuée pour le premier pas ne permet pas de conclure sur le comportement du système en régime de diffusion multiple.

En réalité, un phénomène limite la largeur des spectres d'émission. La largeur naturelle étant faible devant la largeur Doppler $\Delta\omega_D$, un photon de désaccord $\Delta \gg \Delta\omega_D$ ne peut-être diffusé que par un atome de vitesse élevée - plus précisément, sa vitesse v_1 selon l'axe de propagation du rayon lumineux considéré est grande par rapport à la largeur

Δv de la distribution maxwellienne des vitesses. Ainsi, le photon est proche de résonance dans le référentiel de repos atomique. Son désaccord après diffusion est essentiellement imposé par la vitesse de l'atome selon l'axe de réémission, statistiquement plus faible que v_1 . La fréquence du photon diffusé est donc ramenée à proximité de la résonance atomique.

De fait, si l'on considère un gaz en présence de rayonnement et à l'équilibre thermodynamique - par exemple un système entouré de murs parfaitement réfléchissants - alors le flux d'énergie entre le gaz et le rayonnement est nul. Cette condition impose la proportionnalité du profil d'émission et du profil d'absorption [Holstein 1947]. Dans ce cas, la distribution de la taille des pas réalisés par les photons dans l'ensemble du gaz est parfaitement définie.

Dans le paragraphe qui suit, nous allons calculer l'évolution du spectre d'émission des atomes au fur et à mesure des événements de diffusion. Nous verrons que la lumière thermalise, c'est à dire que ce spectre converge vers le profil d'absorption normalisé, et en déduirons la distribution de la taille des pas en régime de diffusion multiple.

V.4.1 Thermalisation de la lumière

On considère un photon, initialement de fréquence ω_0 , soumis à une marche aléatoire dans un gaz infini, et on cherche à calculer la probabilité $\Theta_n(\omega)$ que ce photon possède une fréquence ω après n événements de diffusion. Puisque l'on a supposé le milieu infini, le photon ne peut s'en échapper, et est donc diffusé de façon certaine quelle que soit sa fréquence ω à un instant donné. L'évolution du spectre du photon est calculée en moyennant le spectre d'émission sur tous les angles de diffusion possibles [Molisch 1998, Alves-Pereira 2007]. En utilisant la fonction R de redistribution conjointe des diffuseurs⁹, déjà moyennée sur les angles et qui donne la probabilité qu'un photon à la fréquence ω' soit diffusé et réémis à la fréquence ω , il vient :

$$\Theta_{n+1}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Theta_n(\omega') \frac{R(\omega, \omega')}{\tilde{\Psi}(\omega')} d\omega' \quad (\text{V.23})$$

où $\tilde{\Psi}$ est le profil d'absorption normalisé – dont l'intégrale sur les fréquences vaut 1.

Dans le cas simple d'atomes à deux niveaux de transition infiniment fine, la fonction de redistribution conjointe est donnée par :

$$R_I(\omega, \omega') = \frac{1}{2} \text{erfc}(\bar{X}) \quad (\text{V.24})$$

9. $p(\omega, \omega') = \frac{R(\omega, \omega')}{\tilde{\Psi}(\omega')}$ donne la probabilité, sachant qu'un photon de pulsation ω' a été absorbé, qu'il soit réémis à une fréquence ω . C'est la fonction qui nous intéresse ici. On utilise R comme intermédiaire car cette fonction de redistribution conjointe est disponible dans la littérature pour différents mécanismes d'élargissement. L'utilisation d'un profil d'absorption normalisé $\tilde{\Psi}$ est une pure convention.

où $\bar{X} = \max \left(\left| \frac{\omega - \omega_0}{\sqrt{2}\Delta\omega_D} \right|, \left| \frac{\omega' - \omega_0}{\sqrt{2}\Delta\omega_D} \right| \right)$. Le profil d'absorption normalisé, gaussien, est donné par l'équation V.7. Sans surprise, un spectre d'émission de même forme est conservé par l'équation V.23. Ce résultat nous laisse présager que la mesure de la taille du premier pas réalisée précédemment donne en réalité une bonne estimation de la distribution de la taille des pas en régime de diffusion multiple, du fait du choix très spécifique de l'angle de la première diffusion.

Si l'on prend en compte la largeur finie Γ de la transition atomique, la fonction de redistribution s'écrit ¹⁰ :

$$R_{II}(\omega, \omega') = \pi^{-\frac{3}{2}} \int_{\frac{1}{2} \left| \frac{\omega - \omega'}{\sqrt{2}\Delta\omega_D} \right|}^{+\infty} e^{-u^2} \left[\arctan \left(\frac{\underline{X} + u}{a} \right) - \arctan \left(\frac{\bar{X} - u}{a} \right) \right] du \quad (\text{V.25})$$

où $\underline{X} = \min \left(\left| \frac{\omega - \omega_0}{\sqrt{2}\Delta\omega_D} \right|, \left| \frac{\omega' - \omega_0}{\sqrt{2}\Delta\omega_D} \right| \right)$ et $\bar{X} = \max \left(\left| \frac{\omega - \omega_0}{\sqrt{2}\Delta\omega_D} \right|, \left| \frac{\omega' - \omega_0}{\sqrt{2}\Delta\omega_D} \right| \right)$; $a = \Gamma / (\sqrt{8}\Delta\omega_D)$ est le paramètre de Voigt. La figure V.12 montre l'évolution du spectre d'émission Θ_n , calculé numériquement à partir de l'équation V.23, en fonction du nombre de pas effectués. Elle met en évidence sa convergence vers le profil d'absorption normalisé (Voigt), plus rapide pour les fréquences centrales que dans les ailes de la distribution. Ainsi, après quelques pas, un photon perd en quelque sorte la mémoire de sa fréquence initiale.

Enfin, nous pouvons prendre en compte la structure multi-niveaux du rubidium en réalisant une moyenne des contributions des transitions hyperfines pondérées par leur facteurs de transition. Plus précisément, on obtient en prenant en compte la diffusion inélastique Raman :

$$R(\omega, \omega') = \sum_{F_1=2}^3 \sum_{F_2=2}^3 \sum_{F'=1}^4 \frac{(2F_1 + 1)}{\sum_{F=2}^3 (2F + 1)} \frac{\underline{S}_{F_1 F'} \underline{S}_{F_2 F'}}{\sum_{F=2}^3 \underline{S}_{F F'}} R_{II}(\omega - \omega_{F_2 F'}, \omega' - \omega_{F_1 F'}) \quad (\text{V.26})$$

On en déduit l'évolution du spectre d'émission via l'équation V.23, puis la distribution P_n régissant la taille du pas n à partir des équations V.20, V.4 et V.2. En utilisant la même procédure de fit que précédemment, on obtient le coefficient α de la loi de puissance qui modélise au mieux la distribution P_n dans la gamme de distance accessible expérimentalement. L'évolution de ce coefficient avec le nombre de pas effectués est visible sur la figure V.13. Le nombre de pas effectués augmentant, les ailes du profil d'émission s'élargissent et ce coefficient diminue jusqu'à atteindre, dans la zone accessible expérimentalement, une limite proche de la valeur obtenue pour deux spectres d'émission et d'absorption purement Doppler.

10. Cette expression de la fonction de redistribution R_{II} est celle donnée dans la littérature [Molisch 1998, Alves-Pereira 2007] ; notons qu'elle n'est valable que lorsque la largeur Doppler est grande devant la largeur naturelle, et n'est notamment pas applicable au cas des atomes froids.

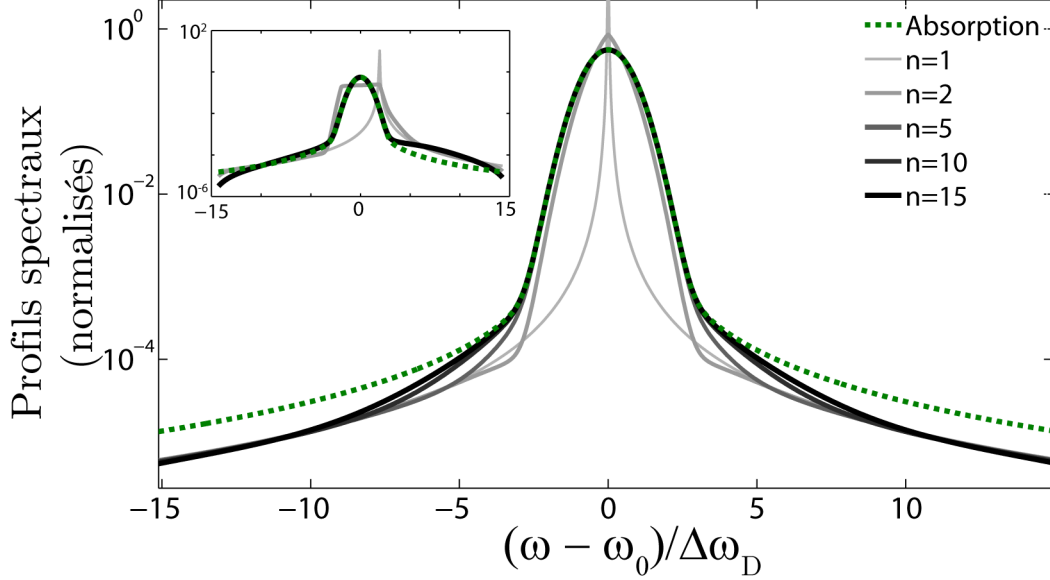


Figure V.12 – Probabilité $\Theta_n(\omega)$ qu'un photon possède une fréquence ω en fonction du nombre de pas n effectués. Le spectre lorentzien initial est celui du laser utilisé dans l'expérience, à résonance. On constate que le spectre d'émission converge vers le profil Voigt d'absorption (pointillés verts). **Insert** Même spectres d'émission, mais pour un laser initial désaccordé de 2 largeurs Doppler (440 MHz).

V.4.2 Mesure de la distribution P

Du fait du processus de thermalisation, une distribution unique P régit la taille de l'ensemble des pas réalisés par la lumière dans un milieu infini en régime de diffusion multiple. La configuration expérimentale C3 nous permet de préparer des photons ayant subi plusieurs (typiquement 2 à 6) événements de diffusion avant de mesurer la taille du pas qu'ils effectuent, et donc d'approcher une mesure de cette distribution limite P (figure V.13). Elle nous permet de mettre en évidence le comportement asymptotique :

$$P(x) \sim x^{-\alpha}, \alpha = 2.08 \pm 0.13 \quad (\text{V.27})$$

Ce résultat est en bon accord avec notre estimation numérique de la distribution P de la taille des pas en régime de diffusion multiple dans la gamme de distances accessible expérimentalement.

V.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons cherché à caractériser la distribution régissant la taille des pas de la marche aléatoire de lumière quasi-résonante dans une vapeur atomique alcaline

diluée à température ambiante. Sa forme, nous l'avons vu, est entièrement déterminée par les profils d'émission et d'absorption des atomes. Par conséquent, elle est susceptible d'évoluer au cours du processus de diffusion avec le spectre de la lumière émise. Cependant, nous avons calculé l'évolution de ce spectre au fur et à mesure du processus de diffusion, et montré ainsi que la distribution de la taille des pas converge vers une loi limite lorsque croît le nombre de pas effectués.

Un dispositif expérimental relativement simple nous a permis de réaliser une mesure directe de la distance parcourue par la lumière entre deux événements de diffusion, d'abord pour le premier pas suivant directement la génération d'un photon par une source laser, puis pour des photons ayant subi plusieurs événements de diffusion et ayant par conséquent perdu la mémoire de leur fréquence initiale. Les résultats obtenus sont en très bon accord avec nos modèles prenant en compte l'élargissement Doppler bien sûr, mais aussi la largeur naturelle des transitions et la structure des niveaux du rubidium 85. Surtout, ils montrent que, dans la gamme de distances accessibles dans l'expérience, la distribution de la taille des pas en régime de diffusion multiple est bien

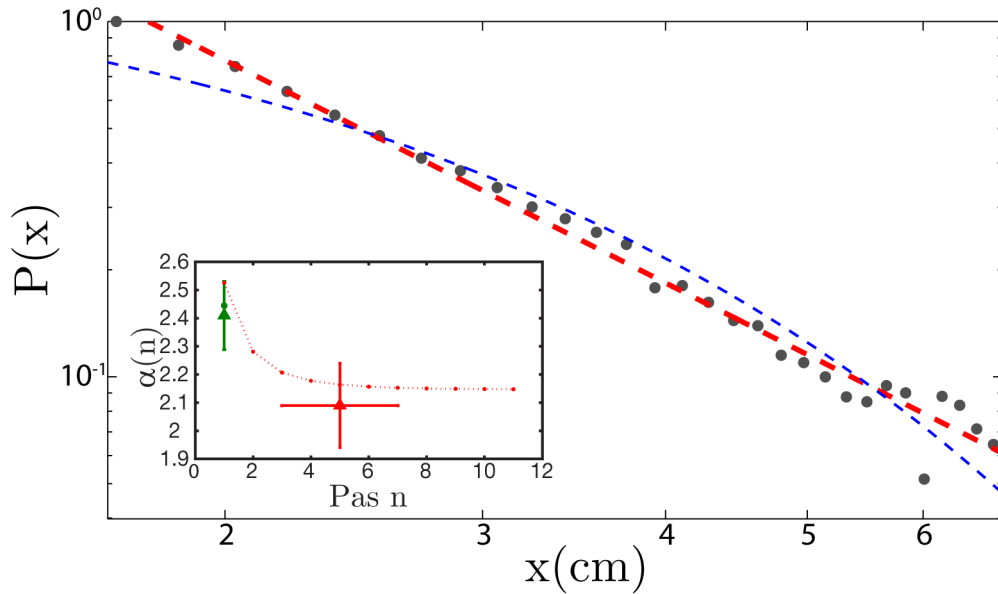


Figure V.13 – **Distribution P en régime de diffusion multiple (échelle log-log)**, mesurée dans la configuration expérimentale C3 (points gris). La mesure est comparée à un fit par une loi exponentielle (pointillés bleus) et par une loi de puissance (pointillés rouges) $P(x) \sim x^{-\alpha}$ avec $\alpha = 2.08 \pm 0.13$. La somme des écarts quadratiques est 4.8 fois plus faible dans le second cas. **Insert :** Evolution du coefficient α de la loi de puissance décrivant P , en fonction du nombre de pas. Le résultat numérique (points rouges) est comparé à la mesure en configurations C3 (triangle rouge) et C2 (triangle vert). Dans ce dernier cas, un modèle sans moyenne angulaire est plus pertinent (cercle vert).

décrite par une loi de puissance :

$$P(x) \sim x^{-\alpha} \text{ avec } \alpha = 2.08 \pm 0.13 \quad (\text{V.28})$$

Le second moment de cette distribution diverge. Par conséquent, si l'on néglige l'effet des corrélations entre les pas, le transport de la lumière en régime stationnaire peut être décrit par un modèle de vols de Lévy.

Plusieurs questions importantes restent cependant ouvertes, qui concernent notamment la dynamique temporelle de la diffusion anormale de la lumière dans une vapeur atomique ou l'impact des corrélations entre les pas. Nous l'avons vu, la plupart des systèmes connus donnant lieu à un régime de superdiffusion sont spatialement inhomogènes, et l'existence de ces corrélations est donc inévitable. Leur impact sur le transport peut cependant être très limité [Barthelemy 2010]. Dans les vapeurs atomiques, les corrélations sont supprimées à condition d'atteindre le régime de redistribution complète de fréquence. L'addition d'un gaz buffer dans les cellules de rubidium peut permettre d'approcher cette condition [Ottinger 1975]. Elle influence la forme des profils d'émission et d'absorption qui peuvent devenir lorentziens, ce qui amène à une décroissance asymptotique de distribution de la taille des pas trop lente pour que le libre parcours moyen de diffusion reste défini.

Finalement, les vapeurs atomiques constituent un système modèle, simple à mettre en place expérimentalement, qui doit permettre de caractériser différents régimes de transport anormal. Ce travail montre que l'élément microscopique que constitue la distribution de la taille des pas est aussi bien accessible expérimentalement que des grandeurs macroscopiques caractéristiques du transport, telles que la transmission diffuse à travers un échantillon.

Perspectives expérimentales : caractérisation macroscopique du régime de diffusion multiple

La prochaine étape de ce projet vise précisément à faire le lien entre ces signatures micro- et macroscopiques. Plus précisément, l'objectif est de mesurer la forme du profil de l'intensité diffuse transmise à travers un échantillon plan contenant une vapeur atomique.

Lorsque des particules subissent une marche aléatoire dans un plan à partir d'un point source, et s'échappent après un nombre fixé de pas, le profil de densité dans le plan dépend fortement de la forme de la distribution de la taille des pas. Notamment, si $P(x) \sim x^{-\alpha}$, avec $\alpha \in]0; 2[$, le profil de densité est une loi de Lévy qui possède le même comportement asymptotique. Bien sûr, ce résultat est modifié dans une géométrie réelle 3D où le nombre de pas effectués par les photons avant de quitter l'échantillon varie. Cependant, un lien subsiste entre le comportement asymptotique de P et celui du profil de transmission, mis en évidence par exemple par des simulations de Monte-Carlo

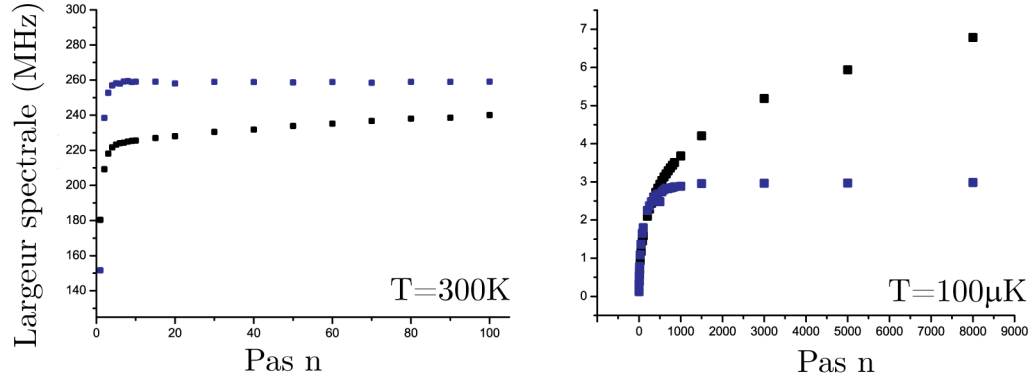


Figure V.14 – **Evolution de la largeur du spectre d'émission des atomes avec le nombre de pas**, dans une vapeur chaude (à gauche) et dans un nuage d'atomes froids (à droite), obtenue par simulations de Monte-Carlo. L'évolution de l'écart-type de la distribution (en noir) diffère de celle de la demi-largeur à mi-hauteur (en bleu) du fait de l'influence des ailes de la distribution. On note que cette dernière se stabilise en quelques pas dans une vapeur chaude, en quelques centaines de pas dans un nuage d'atomes froids.

[Bertolotti 2010]. L'expérience en cours de construction vise à tester la validité de ce lien, en présence et en l'absence de corrélations entre les pas - en tentant de supprimer ces dernières via l'introduction d'un gaz buffer provoquant un fort élargissement collisionnel. Notons que la forme analytique du profil de transmission en régime de diffusion anormale reste à déterminer.

Et dans un nuage d'atomes froids ?

Dans les chapitres précédents, nous avons négligé l'impact de la redistribution en fréquence par effet Doppler dans un nuage d'atomes froids, et utilisé un modèle diffusif standard du transport. A une température de $100\mu\text{K}$, quelques centaines de pas sont en effet nécessaires pour qu'un photon subisse un décalage en fréquence de quelques MHz, comparable à la largeur des transitions de la raie D2 du rubidium (figure V.14).

Cependant, un photon créé au centre d'un nuage d'épaisseur optique 300 effectue de l'ordre de 10^4 pas avant de quitter l'échantillon. Dans ces conditions, l'effet Doppler ne peut-être négligé. Des simulations de Monte-Carlo montrent qu'après un nombre suffisant de pas, la lumière thermalise (figure V.14). Le spectre d'émission des atomes converge vers le profil d'absorption Voigt de sorte que, typiquement, la largeur à mi hauteur du spectre d'émission des atomes est stable après 10^3 pas. Tout laisse penser que dans ces conditions, un modèle de diffusion anormale est nécessaire pour décrire le transport de la lumière dans un nuage d'atomes froids de grande taille. De plus, une transition entre diffusion normale et anormale doit exister aux échelles intermédiaires [Pierrat 2009].

Conclusion

Nous l'avons vu, les vapeurs atomiques ont historiquement joué un rôle clé dans la compréhension du phénomène de diffusion de la lumière dans les milieux désordonnés. Cela est notamment dû au caractère extrêmement efficace des diffuseurs que constituent les atomes lorsqu'ils sont éclairés à résonance, et à la simplicité des modèles décrivant leur réponse en milieu passif. La possibilité d'obtenir une réponse atomique non linéaire, du fait des propriétés intrinsèques du milieu ou d'une manipulation des atomes par des champs externes, ouvre la voie à l'exploration de régimes qui dépassent la diffusion standard. **Cette thèse de doctorat explore ainsi la possibilité d'utiliser les vapeurs atomiques comme système modèle pour l'étude de deux phénomènes distincts : la diffusion anormale de la lumière et le laser aléatoire.**

Dans la première partie de ce manuscrit, nous avons introduit l'équation de la diffusion pour décrire le transport du rayonnement en milieux désordonnés. Nous avons appris à lier les coefficients qui interviennent dans cette équation aux paramètres qui décrivent à l'échelle microscopique l'interaction entre les atomes et le rayonnement. Enfin, nous avons vu comment obtenir ces paramètres dans un milieu d'atomes multi-niveaux éclairés sur une ou plusieurs transitions, à partir de la matrice densité atomique calculée via les équations de Bloch optiques.

Dans une vapeur atomique à température ambiante, l'élargissement Doppler crée des photons désaccordés par rapport à la résonance atomique, qui réalisent des pas anormalement longs, brisant les conditions d'application de l'équation de la diffusion. Notamment, si l'on suppose les profils d'émission et d'absorption atomiques identiques et gaussiens, la distribution P de la taille des pas prend la forme d'une loi de puissance de variance divergente ; on entre alors dans un régime de vols de Lévy[Pereira 2004].

Le premier projet mené durant cette thèse visait à mesurer directement la distribution régissant la taille d'un pas de la marche aléatoire des photons dans une vapeur de rubidium pour vérifier cette prédiction. Nous avons montré, à la fois expérimentalement et par une théorie *ab initio*, que la forme du premier pas est affectée par la mémoire que les photons gardent de la fréquence de la source. En revanche, après quelques pas, la lumière thermalise, et la distribution P tend vers une loi limite. Nous avons pu mesurer une loi proche de cette limite et montrer que, dans la gamme de

distances accessible à l'expérience, **la distribution de la taille des pas prend la forme d'une loi de puissance décroissante $x^{-\alpha}$, avec $\alpha = 2.08 \pm 0.13$** . Ce résultat est en excellent accord avec notre théorie *ab initio*, et caractérise un régime de **vols de Lévy**.

Les vapeurs atomiques constituent ainsi un système prometteur pour l'étude expérimentale des différents régimes de diffusion anormale – peut être le seul système homogène connu à ce jour donnant lieu à un comportement superdiffusif. La prochaine étape de ce projet consistera à valider le lien devant exister entre les signatures micro et macroscopiques de la diffusion anormale. Au delà, on peut imaginer d'obtenir des régimes où le libre parcours moyen diverge, ou encore de supprimer les corrélations entre les pas, en utilisant des mécanismes collisionnels de redistribution en fréquence. La palette des régimes de diffusion anormale qu'il est possible de caractériser à l'aide des vapeurs atomiques semble ainsi considérable.

Le second objectif de cette thèse était de combiner gain et diffusion dans un nuage d'atomes froids pompé par des lasers externes pour atteindre le régime de laser aléatoire : lorsque l'épaisseur optique du nuage dépasse une valeur critique, le gain dans le volume prend le pas sur les pertes par la surface, et l'intensité diffuse s'emballe. Avant que ce travail ne commence, des modèles simples avaient déjà été réalisés qui semblaient indiquer la faisabilité d'un tel laser aléatoire [Froufe-Pérez 2009]. Plusieurs questions restaient cependant ouvertes : à quel point le modèle est-il réaliste ? La condition de seuil prédite est-elle atteignable expérimentalement ? Comment mettre en évidence l'apparition d'un laser aléatoire ?

Nous avons comparé la pertinence de plusieurs mécanismes de gain – Mollow, mélange à quatre ondes, Raman Zeeman et hyperfin – pour la réalisation du laser aléatoire, selon plusieurs critères : accessibilité de la condition de seuil, réalisme du modèle, et facilité supposée de la détection du laser aléatoire. Sur tous ces points, le gain Raman hyperfin est ressorti comme le meilleur candidat. Parallèlement à cela, l'amélioration de nos techniques de piégeage et de compression a permis d'atteindre des épaisseurs optiques de l'ordre de 300, suffisantes pour dépasser le seuil du laser aléatoire, même dans les prévisions les plus pessimistes.

Nos premiers tests expérimentaux nous ont cependant réservé une surprise importante : dans un nuage pompé en configuration de gain Raman hyperfin, le rayonnement diffus a une influence significative sur la réponse d'un atome au champ extérieur – et notamment l'émission atomique incohérente, négligée dans nos premiers modèles de lasers aléatoires. L'intensité totale du rayonnement de fluorescence du nuage, ou encore les populations atomiques, dépendent ainsi fortement de l'épaisseur optique, et ce y compris dans des régimes sans gain et donc en l'absence de tout laser aléatoire. En couplant des modèles du transport du rayonnement et de la réponse atomique, **nous avons pu expliquer nombre de nos observations expérimentales en terme de piégeage radiatif**

d'un rayonnement incohérent.

Cependant, dans les régimes de pompage où un laser aléatoire est attendu, l'interprétation des données expérimentales est complexe. L'existence d'un rayonnement diffus large bande induisant uniquement un pompage incohérent des populations atomiques ne permet pas d'expliquer nos observations. La prise en compte du spectre du rayonnement diffus semble donc nécessaire, mais la réalisation d'un tel modèle reste un challenge. Toutefois, **seule l'invocation de phénomènes d'émission spontanée amplifiée et de diffusion couplés nous permet à l'heure actuelle d'expliquer qualitativement nos observations. En bref, tout semble indiquer que les ingrédients d'un laser aléatoire sont effectivement réunis dans notre système.**

Discriminer entre émission spontanée amplifiée et laser aléatoire, et obtenir une signature directe du phénomène, est la prochaine étape à franchir pour poursuivre ou conclure ce projet. Elle constitue un challenge technologique difficile, mais plusieurs pistes sont ouvertes : réalisation de spectres haute résolution de la lumière émise par l'échantillon via des expériences de battements ; mesures des corrélations d'intensité ; ou encore étude de la dynamique du système à l'allumage des pompes.

Qu'il conduise ou non à l'observation de signatures directes d'un laser aléatoire à atomes froids, ce projet a eu des retombées différentes de celles initialement attendues. Le dispositif réalisé n'incarne pas le système modèle imaginé initialement, permettant d'explorer différents régimes de laser aléatoire. En revanche, il nous a permis de progresser quant à notre compréhension des processus de physique atomique à prendre en compte pour décrire l'interaction lumière matière dans un gaz optiquement épais. Notamment, il nous a amenés à prendre conscience de l'importance de l'émission atomique incohérente dans les phénomènes d'émission collective pouvant se dérouler dans un nuage d'atomes froids.

Annexes

Éléments de démonstration des équations de Bloch optiques - Théorème de régression quantique

L’objectif de cette annexe est de donner les éléments de démonstration des équations de Bloch optiques puis du théorème de régression quantique. La démonstration proposée ici est très largement inspirée de celle présentée dans [Cohen-Tannoudji 2001, Complément A_V]. On cherche simplement à étendre cette démonstration au cas d’un atome multi-niveaux, et notamment à mettre en évidence l’existence de termes de relaxation généralisés dans les équations de Bloch optiques. Si l’existence de ces termes a originellement été mise en évidence par Milonni au milieu des années 70 [Milonni 1975, Milonni 1976], ils sont le plus souvent négligés dans les articles récents décrivant des processus d’interaction cohérente entre un atome multi-niveaux et la lumière. Ils peuvent cependant avoir un impact significatif sur la réponse atomique.

On considère le même système qu’au paragraphe II.3.1 ; notamment, les niveaux atomiques sont divisés en un groupe de niveaux excités et un groupe de niveaux “fondamentaux” quasi dégénérés, tels que représentés sur la figure II.4. Une situation proche a déjà été étudiée dans [Cardimona 1983], mais avec l’objectif d’établir des équations de Bloch optiques pour un atome à deux niveaux effectifs.

L’atome est placé à l’origine des coordonnées ($\mathbf{r} = \mathbf{0}$), et interagit à la fois avec le champ incident extérieur semi-classique $E_e(\mathbf{0}, t)$ et le champ quantique $\mathbf{E}(\mathbf{0})$ supposé initialement dans l’état du vide $|0\rangle$.

A.1 Hamiltonien du système atome + champ

L’hamiltonien du système s’écrit comme la somme de plusieurs contributions :

$$H = H_A + H_R + H_{Ie} + H_I \tag{A.1}$$

H_A est l'hamitonien atomique, donné par :

$$H_A = \hbar \sum_i \omega_i |i\rangle\langle i| \quad (\text{A.2})$$

où $\hbar\omega_i$ correspond à l'énergie du niveau $|i\rangle$ par rapport à une référence arbitraire. H_R est l'Hamiltonien du champ quantique :

$$H_R = \int d^3\mathbf{k} \sum_{\boldsymbol{\varepsilon} \perp \mathbf{k}} \hbar\omega (a_{\boldsymbol{\varepsilon}}^+(\mathbf{k})a_{\boldsymbol{\varepsilon}}(\mathbf{k})) \quad (\text{A.3})$$

$\boldsymbol{\varepsilon}$ représente la polarisation associée à un mode, \mathbf{k} le vecteur d'onde. On limite l'intégrale aux vecteurs d'onde \mathbf{k} de module $|\mathbf{k}| < k_M$, où k_M vérifie la condition des grandes longueurs d'ondes (c'est à dire qu'une onde plane de vecteur d'onde k_M crée à un instant t donné un champ homogène à l'échelle de l'atome). Cette troncature permet d'éviter une divergence de l'énergie du champ [Welton 1948]. L'hamiltonien d'interaction entre l'atome et le champ classique extérieur s'écrit, quant à lui, dans l'approximation dipolaire électrique :

$$H_{I_e} = -\mathbf{D}^\dagger \cdot \mathbf{E}(\mathbf{0}) = -\frac{1}{2} \sum_{\text{Etats } i,j} \sum_L (D_{ij}\mathbf{e}_{ij}^* |i\rangle\langle j| + D_{ji}\mathbf{e}_{ji}^* |j\rangle\langle i|) \cdot \mathbf{E}_L(\mathbf{0}) \quad (\text{A.4})$$

où les indices i, j désignent les états de l'atome et L les ondes planes monochromatiques extérieures excitant l'atome. Nous avons utilisé la décomposition II.56 de l'opérateur moment dipolaire. On rappelle que D_{kl} est le moment dipolaire associé à la transition kl ; il est nul si la transition est interdite. \mathbf{e}_{kl} est le vecteur de la base standard qui correspond à la polarisation de la lumière pouvant exciter la transition kl . L'hamiltonien d'interaction entre l'atome et le champ quantique s'écrit de façon similaire au précédent :

$$H_I = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} (D_{ij}\mathbf{e}_{ij}^* |i\rangle\langle j| + D_{ji}\mathbf{e}_{ji}^* |j\rangle\langle i|) \cdot \mathbf{E}_{\perp z}(\mathbf{0}) \quad (\text{A.5})$$

$\mathbf{E}_{\perp z}$ est l'opérateur champ quantique transverse, donné par :

$$\mathbf{E}_{\perp z}(\mathbf{r}) = i \int d^3\mathbf{k} \sum_{\boldsymbol{\varepsilon} \perp \mathbf{k}} \mathcal{E}_\omega (a_{\boldsymbol{\varepsilon}}(\mathbf{k})\boldsymbol{\varepsilon} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - a_{\boldsymbol{\varepsilon}}^+(\mathbf{k})\boldsymbol{\varepsilon} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}) \quad (\text{A.6})$$

où l'on a introduit :

$$\begin{aligned} \omega &= ck \\ \mathcal{E}_\omega &= \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0(2\pi)^3}} \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

A.2 Equations d'évolution des opérateurs atomiques

Comme au paragraphe II.3.1, on introduit les opérateurs atomiques :

$$\mathcal{S}_{kl} = |l\rangle\langle k| \quad (\text{A.8})$$

Dans un point de vue de Heiseberg, ces opérateurs dépendent du temps, et leur évolution est régie par l'équation différentielle :

$$\dot{\mathcal{S}}_{kl}(t) = \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{S}_{kl}(t), H(t)] \quad (\text{A.9})$$

En explicitant les commutateurs de ces opérateurs avec chacun des termes de l'Hamiltonien

$$\begin{aligned} [\mathcal{S}_{kl}, H_A] &= \hbar(\omega_k - \omega_l) \mathcal{S}_{kl} \\ [\mathcal{S}_{kl}, H_R] &= 0 \\ [\mathcal{S}_{kl}, H_{Ie}] &= - \sum_j \sum_L \frac{1}{2} (D_{kj} \mathbf{e}_{kj}^* \mathcal{S}_{jl} - D_{jl} \mathbf{e}_{jl}^* \mathcal{S}_{kj}) \cdot (\mathbf{E}_L(\mathbf{0}, \omega_L) e^{i\omega_L t} + \mathbf{E}_L^*(\mathbf{0}, \omega_L) e^{-i\omega_L t}) \\ [\mathcal{S}_{kl}, H_I] &= - \sum_j (D_{kj} \mathbf{e}_{kj}^* \mathcal{S}_{jl} - D_{jl} \mathbf{e}_{jl}^* \mathcal{S}_{kj}) \cdot \mathbf{E}_\perp(\mathbf{0}) \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

on obtient finalement l'équation d'évolution recherchée :

$$\begin{aligned} \dot{\mathcal{S}}_{kl}(t) &= i(\omega_l - \omega_k) \mathcal{S}_{kl} \\ &+ \frac{i}{\hbar} \sum_j \sum_L \frac{1}{2} (D_{kj} \mathbf{e}_{kj}^* \mathcal{S}_{jl} - D_{jl} \mathbf{e}_{jl}^* \mathcal{S}_{kj}) \cdot (\mathbf{E}_L(\mathbf{0}, \omega_L) e^{i\omega_L t} + \mathbf{E}_L^*(\mathbf{0}, \omega_L) e^{-i\omega_L t}) \\ &+ \frac{i}{\hbar} \sum_j (D_{kj} \mathbf{e}_{kj}^* \mathcal{S}_{jl} - D_{jl} \mathbf{e}_{jl}^* \mathcal{S}_{kj}) \mathbf{E}_\perp(\mathbf{0}, t) \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

L'opérateur $\mathbf{E}_{\perp z}$ fait intervenir les opérateurs création et annihilation du champ. Leur équation d'évolution est obtenue par la même méthode :

$$\dot{a}_\varepsilon(\mathbf{k}, t) = -i\omega a_\varepsilon(\mathbf{k}, t) + \frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_\omega \varepsilon \cdot \mathbf{D}^\dagger(t) \quad (\text{A.12})$$

Avec, on le rappelle :

$$\mathbf{D}(t) = \mathbf{e}_{ij} \sum_{i,j} \frac{1}{2} (\mathcal{S}_{ij} + \mathcal{S}_{ji}) D_{ij} \quad (\text{A.13})$$

Nous avons établi un jeu consistant d'équations d'évolution des opérateurs du champ et de l'atome. L'objectif est maintenant d'écrire les équations d'évolution des opérateurs atomiques seuls sous la forme d'équations de Langevin, où les opérateurs champ apparaissent dans les seules forces de Langevin.

Approximation de l'onde tournante

A cet effet, on commence par simplifier le système en se plaçant dans l'approximation de l'onde tournante. On introduit ainsi les opérateurs :

$$\hat{S}_{ij} = \mathcal{S}_{ij} e^{-i\omega_{ij}t} \quad \hat{a}_{\epsilon} = a_{\epsilon} e^{i\omega t} \quad (\text{A.14})$$

D'autre part, on décompose l'opérateur champ en des composantes de fréquences positives et négatives :

$$\begin{aligned} E_{\perp}(\mathbf{0}, t) &= E_{\perp}^{(a)}(\mathbf{0}, t) + E_{\perp}^{(c)}(\mathbf{0}, t) \\ \text{avec } E_{\perp}^{(a)}(\mathbf{0}, t) &= \int d^3\mathbf{k} \sum_{\epsilon \perp \mathbf{k}} i\epsilon \mathcal{E}_{\omega} \hat{a}_{\epsilon}(\mathbf{k}, t) e^{-i\omega t} \\ E_{\perp}^{(c)}(\mathbf{0}, t) &= (E_{\perp}^{(a)}(\mathbf{0}, t))^+ \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

L'équation d'évolution A.11 des opérateurs atomiques s'écrit :

$$\begin{aligned} \dot{\hat{S}}_{kl}(t) &= \frac{i}{\hbar} \sum_j \sum_L \frac{1}{2} D_{kj} \mathbf{e}_{kj}^* \hat{S}_{jl} \cdot (\mathbf{E}_L(\mathbf{0}, \omega_L) e^{i(\omega_L + \omega_{jl} - \omega_{kl})t} + \mathbf{E}_L^*(\mathbf{0}, \omega_L) e^{i(-\omega_L + \omega_{jl} - \omega_{kl})t}) \\ &\quad - \frac{i}{\hbar} \sum_j \sum_L D_{jl} \mathbf{e}_{jl}^* \hat{S}_{kj} \cdot (\mathbf{E}_L(\mathbf{0}, \omega_L) e^{i(\omega_L + \omega_{kj} - \omega_{kl})t} + \mathbf{E}_L^*(\mathbf{0}, \omega_L) e^{i(-\omega_L + \omega_{kj} - \omega_{kl})t}) \\ &\quad + \frac{i}{\hbar} \sum_j (D_{kj} \mathbf{e}_{kj}^* \hat{S}_{jl} e^{i(\omega_{jl} - \omega_{kl})t} - D_{jl} \mathbf{e}_{jl}^* \hat{S}_{kj} e^{i(\omega_{kj} - \omega_{kl})t}) (E_{\perp}^{(a)}(\mathbf{0}, t) + E_{\perp}^{(c)}(\mathbf{0}, t)) \end{aligned} \quad (\text{A.16})$$

Elle devient dans l'approximation de l'onde tournante :

$$\begin{aligned} \dot{\hat{S}}_{kl}(t) &= - \sum_{j < k} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{kj,L}^*}{2} \hat{S}_{jl} e^{i(\omega_{jk} - \omega_L)t} - \sum_{j > k} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{kj,L}}{2} \hat{S}_{jl} e^{i(\omega_L - \omega_{kj})t} \\ &\quad + \sum_{j > l} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{jl,L}^*}{2} \hat{S}_{kj} e^{i(\omega_{lj} - \omega_L)t} + \sum_{j < l} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{jl,L}}{2} \hat{S}_{kj} e^{i(\omega_L - \omega_{jl})t} \\ &\quad + \frac{i}{\hbar} \sum_{j > k} \mathbf{E}_{\perp}^{(c)} (D_{kj} \mathbf{e}_{kj}^* \hat{S}_{jl} e^{-i\omega_{kj}t}) - \frac{i}{\hbar} \sum_{j < l} \mathbf{E}_{\perp}^{(c)} (D_{jl} \mathbf{e}_{jl}^* \hat{S}_{kj} e^{-i\omega_{jl}t}) \\ &\quad + \frac{i}{\hbar} \sum_{j < k} (D_{kj} \mathbf{e}_{kj}^* \hat{S}_{jl} e^{i\omega_{jk}t}) \mathbf{E}_{\perp}^{(a)} - \frac{i}{\hbar} \sum_{j > l} (D_{jl} \mathbf{e}_{jl}^* \hat{S}_{kj} e^{i\omega_{lj}t}) \mathbf{E}_{\perp}^{(a)} \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

On rappelle que la notation $k < l$ signifie que l'énergie du niveau k est inférieure (ou égale) à celle du niveau l , et que $k \neq l$. Nous avons utilisé les pulsations de Rabi complexes telles qu'introduites par l'équation II.58 :

$$\begin{aligned} \tilde{\Omega}_{L,kl} &= -D_{kl} \mathbf{e}_{kl}^* \cdot \mathbf{E}_L(\mathbf{0}, \omega_L) / \hbar \text{ pour } k < l \\ \tilde{\Omega}_{L,kl} &= -D_{kl} \mathbf{e}_{kl} \cdot \mathbf{E}_L(\mathbf{0}, \omega_L) \text{ sinon} \end{aligned}$$

L'équation A.12 régissant l'évolution des opérateurs champ devient de la même manière :

$$\dot{\hat{a}}_{\epsilon}(\mathbf{k}, t) = \frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_{\omega} \epsilon \cdot \sum_{j < i} \hat{S}_{ij} \mathbf{e}_{ij}^* D_{ij} e^{i(\omega - \omega_{ji})t} \quad (\text{A.18})$$

Champ libre et champ des sources

A ce stade, nous pouvons décomposer le champ en deux parties : un champ libre (indice 0), qui existerait en l'absence d'atome ; et un champ des sources (indice s), qui correspond au rayonnement atomique. Nous allons pouvoir exprimer cette seconde partie en fonction des opérateurs atomiques, et donc progresser vers l'établissement d'équations d'évolution auto-consistantes pour ces opérateurs. Nous verrons que le champ libre, quant à lui, crée une force fluctuante de valeur moyenne nulle, qui est une force de Langevin.

L'équation A.18 s'écrit sous forme intégrale :

$$\hat{a}_{\epsilon}(\mathbf{k}, t) = \hat{a}_{\epsilon}(\mathbf{k}, t_0) + \frac{\mathcal{E}_{\omega}}{\hbar} \int_0^{t-t_0} d\tau \epsilon \cdot \sum_{j < i} \hat{S}_{ij}(t - \tau) \mathbf{e}_{ij}^* D_{ij} e^{i(\omega - \omega_{ji})(t - \tau)} \quad (\text{A.19})$$

On peut écrire à partir de là le champ libre et le champ des sources comme :

$$\mathbf{E}_{0\perp}^{(a)}(\mathbf{0}, t) = \int d^3\mathbf{k} \sum_{\epsilon \perp \mathbf{k}} i\epsilon \mathcal{E}_{\omega} \hat{a}_{\epsilon}(\mathbf{k}, t_0) e^{-i\omega t} \quad (\text{A.20})$$

$$\mathbf{E}_{s\perp}^{(a)}(\mathbf{0}, t) = \frac{i}{\hbar} \int d^3\mathbf{k} \mathcal{E}_{\omega}^2 \sum_{\epsilon \perp \mathbf{k}} \epsilon \int_0^{t-t_0} d\tau \sum_{j < i} [\epsilon \cdot \mathbf{e}_{ij}^* D_{ij} S_{ij}(t - \tau) e^{-i(\omega - \omega_{ji})\tau} e^{-i\omega_{ji}t}] \quad (\text{A.21})$$

L'opérateur champ commute avec les opérateurs atomiques. Il n'en est pas de même avec les opérateurs champ libre et champ des sources pris individuellement. Dans l'équation A.17, nous avons pris soin de placer les opérateurs $\hat{a}_{\epsilon}(\mathbf{k}, t)$ à droite des opérateurs atomiques, les opérateurs $\hat{a}_{\epsilon}(\mathbf{k}, t)^+$ à gauche : c'est l'ordre normal. Ce choix nous permettra de simplifier les équations d'évolution des valeurs moyennes des opérateurs atomiques en utilisant les relations :

$$\begin{aligned} \hat{a}_{\epsilon}(\mathbf{k}, t_0) | 0 \rangle &= 0 \\ \langle 0 | \hat{a}_{\epsilon}^+(\mathbf{k}, t_0) &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A.22})$$

L'équation d'évolution A.21 de l'opérateur champ des sources fait intervenir l'intégrale sur τ du produit d'opérateurs atomiques par la fonction :

$$\mathbf{f}(\tau) = \int d^3\mathbf{k} \mathcal{E}_{\omega}^2 e^{-i(\omega - \omega_{ji})\tau} \epsilon [\epsilon \cdot] \quad (\text{A.23})$$

où le point dénote un produit scalaire. Cette fonction de τ a une largeur de l'ordre de $1/(ck_M)$. Les opérateurs atomiques $S_{ji}(t - \tau)$, au contraire, ont une variation lente devant la fréquence ω_{ji} . Finalement, on peut approcher ces opérateurs par leur valeur non perturbée pour le calcul de l'intégrale : $S_{ji}(t - \tau) \simeq S_{ji}(t)$. Il vient ainsi :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{s\perp}^{(a)}(\mathbf{0}, t) &= \frac{i}{\hbar} \int d^3\mathbf{k} \sum_{\boldsymbol{\varepsilon} \perp \mathbf{k}} \sum_{i < j} \boldsymbol{\varepsilon} \mathcal{E}_\omega [\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{e}_{ij}^* D_{ij}] e^{-i\omega_{ji}t} S_{ji}(t) \int d\tau e^{i(\omega - \omega_{ji})\tau} \\ &= \frac{i}{\hbar} \int d^3\mathbf{k} \sum_{\boldsymbol{\varepsilon} \perp \mathbf{k}} \sum_{i < j} \boldsymbol{\varepsilon} \mathcal{E}_\omega [\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{e}_{ij}^* D_{ij}] e^{-i\omega_{ji}t} S_{ji}(t) \left[-i\mathcal{P}\left(\frac{1}{\omega_{ji} - \omega}\right) + \pi\delta(\omega - \omega_{ji}) \right] \end{aligned} \quad (\text{A.24})$$

\mathcal{P} désigne ici la partie principale.

Dans la suite, on considère comme au paragraphe II.3.1 un atome qui ne possède que deux groupes de niveaux, des niveaux hauts et des niveaux bas métastables. Les transitions optiques entre niveaux d'un même groupe sont interdites. Enfin, les écarts d'énergie entre les niveaux d'un même groupe sont négligeables devant $\hbar\omega_0$, l'écart d'énergie entre les deux groupes. On peut donc remplacer les ω_{ji} par ω_0 pour les calculs d'énergie dans l'équation ci-dessus.

Forces de Langevin et termes de relaxation

En utilisant ces expressions intégrales des opérateurs champ, on peut réécrire l'équation d'évolution A.17 des opérateurs atomiques sous la forme :

$$\begin{aligned} \dot{\hat{S}}_{kl}(t) &= \left[- \sum_{j < k} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{kj,L}^*}{2} \hat{S}_{jl} e^{i(\omega_{jk} - \omega_L)t} - \sum_{j > k} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{kj,L}}{2} \hat{S}_{jl} e^{i(\omega_L - \omega_{kj})t} \right. \\ &\quad + \sum_{j > l} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{jl,L}^*}{2} \hat{S}_{kj} e^{i(\omega_{lj} - \omega_L)t} + \sum_{j < l} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{jl,L}}{2} \hat{S}_{kj} e^{i(\omega_L - \omega_{jl})t} \left. \right] \\ &\quad + R_{kl}(t) + F_{kl}(t) \end{aligned} \quad (\text{A.25})$$

Le terme entre crochets décrit l'évolution hamiltonienne des opérateurs atomiques en présence du champ externe seulement. Le terme $F_{kl}(t)$, qui décrit l'impact du champ libre, s'écrit :

$$\begin{aligned} F_{kl}(t) &= \frac{i}{\hbar} \sum_{j > k} \mathbf{E}_{0\perp}^{(c)}(\mathbf{e}_{kj}^* D_{kj} \hat{S}_{jl}(t) e^{-i\omega_{kj}t}) - \frac{i}{\hbar} \sum_{j < l} \mathbf{E}_{0\perp}^{(c)}(\mathbf{e}_{jl}^* D_{jl} \hat{S}_{kj}(t) e^{-i\omega_{jk}t}) \\ &\quad + \frac{i}{\hbar} \sum_{j < k} (\mathbf{e}_{kj}^* D_{kj} \hat{S}_{jl}(t) e^{i\omega_{jk}t}) \mathbf{E}_{0\perp}^{(a)} - \frac{i}{\hbar} \sum_{j > l} (\mathbf{e}_{jl}^* D_{jl} \hat{S}_{kj}(t) e^{i\omega_{lj}t}) \mathbf{E}_{0\perp}^{(a)} \end{aligned} \quad (\text{A.26})$$

Les équations A.22 suffisent à montrer que, si le champ est initialement dans l'état du vide, cette contribution a une valeur moyenne nulle. On peut d'autre part montrer que le temps de corrélation de $F_{kl}(t)$ est très court devant $1/\Gamma$: il s'agit donc d'une force de Langevin. Nous ne détaillerons pas cette démonstration ici, qui est identique à celle effectuée dans le cas d'un atome à deux niveaux [Cohen-Tannoudji 2001, p. 382]. Enfin, le terme $R_{kl}(t)$ de l'équation A.25 correspond à un terme de relaxation :

$$\begin{aligned}
R_{kl}(t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int d^3\mathbf{k} \mathcal{E}_\omega^2 \sum_{\boldsymbol{\varepsilon} \perp \mathbf{k}} \left[-i\mathcal{P}\left(\frac{1}{\omega_0 - \omega}\right) + \pi\delta(\omega - \omega_0) \right] \times \\
& \left(\sum_{\substack{l < m \\ k < i}} [(\mathbf{e}_{ml}^* D_{ml} \cdot \boldsymbol{\varepsilon})(\mathbf{e}_{ki}^* D_{ki} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}) S_{im} e^{i(\omega_{il} - \omega_{kl})t}] - \sum_{\substack{m < l \\ m < i}} [(\mathbf{e}_{im}^* D_{im} \cdot \boldsymbol{\varepsilon})(\mathbf{e}_{ml}^* D_{ml} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}) S_{ki} e^{i(\omega_{mi} - \omega_{ml})t}] \right) \\
& + \frac{1}{\hbar^2} \int d^3\mathbf{k} \mathcal{E}_\omega^2 \sum_{\boldsymbol{\varepsilon} \perp \mathbf{k}} \left[i\mathcal{P}\left(\frac{1}{\omega_0 - \omega}\right) + \pi\delta(\omega - \omega_0) \right] \times \\
& \left(\sum_{\substack{l < m \\ k < i}} [(\mathbf{e}_{ml}^* D_{ml} \cdot \boldsymbol{\varepsilon})(\mathbf{e}_{ki}^* D_{ki} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}) S_{im} e^{i(\omega_{lm} - \omega_{ki})t}] - \sum_{\substack{m < k \\ m < i}} [(\mathbf{e}_{im}^* D_{im} \cdot \boldsymbol{\varepsilon})(\mathbf{e}_{km}^* D_{km} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}) S_{il} e^{i(\omega_{mk} - \omega_{mi})t}] \right)
\end{aligned} \tag{A.27}$$

Finalemnt, l'intégration sur \mathbf{k} ne donne un terme de relaxation non nul que lorsque les vecteurs unitaires qui apparaissent dans les termes de produit scalaire sont identiques. On obtient :

$$\begin{aligned}
\dot{\hat{S}}_{kl} = & \sum_{j>l} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{jl,L}^*}{2} \hat{S}_{kj} e^{i(\omega_{lj} - \omega_L)t} \sum_{j<l} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{jl,L}}{2} \hat{S}_{kj} e^{i(\omega_L - \omega_{jl})t} \\
& - \sum_{j>k} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{kj,L}^*}{2} \hat{S}_{jl} e^{i(\omega_{jk} - \omega_L)t} + \sum_{j>k} \sum_L \frac{i\tilde{\Omega}_{kj,L}}{2} \hat{S}_{jl} e^{i(\omega_L - \omega_{kj})t} \\
& - \sum_{\substack{m < l \\ m < n}} \hat{R}_{nmml} \hat{S}_{kn} e^{i(\omega_{mn} - \omega_{ml})t} - \sum_{\substack{m < k \\ m < n}} \hat{R}_{nmmk}^* \hat{S}_{nl} e^{i(\omega_{mk} - \omega_{mn})t} \\
& + \sum_{\substack{l < m \\ k < n}} 2 \operatorname{Re}[\hat{R}_{mlkn}] \hat{S}_{nm} e^{i(\omega_{lm} - \omega_{kn})t} + F_{kl}(t)
\end{aligned} \tag{A.28}$$

avec :

$$\hat{R}_{jklm} = \frac{4\pi D_{jk} D_{lm} \mathbf{e}_{kj}^* \cdot \mathbf{e}_{ml}}{3\epsilon_0 \hbar c^3 (2\pi)^3} \left(\pi\omega_0^3 - \frac{i}{2} \int_{-\omega_M}^{\omega_M} d\omega \omega^3 \mathcal{P}\left(\frac{1}{\omega_0 - \omega}\right) \right) \tag{A.29}$$

On peut enfin introduire le déplacement radiatif Δ_{kl} de la transition kl comme [Milonni 1975] :

$$\Delta_{kl} = \sum_m \operatorname{Re}[\hat{R}_{lmml} - \hat{R}_{kmmk}] \tag{A.30}$$

En effectuant le changement de variable :

$$\tilde{S}_{kl} = \hat{S}_{kl} e^{-i\Delta_{kl}t} \quad (\text{A.31})$$

puis en intégrant les déplacements radiatifs Δ_{kl} dans les fréquences de transition atomiques ω_{kl} , on obtient finalement :

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{S}}_{kl} = & \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j < l}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,jl}}{2} \tilde{S}_{kj} e^{i(\omega_L - \omega_{jl})t} + \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j > l}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,lj}}{2} \tilde{S}_{kj} e^{i(\omega_{lj} - \omega_L)t} \\ & - \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j < k}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,kj}}{2} \tilde{S}_{jl} e^{i(\omega_{jk} - \omega_L)t} - \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j > k}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,jk}}{2} \tilde{S}_{jl} e^{i(\omega_L - \omega_{kj})t} \\ & - \sum_{\substack{m < l \\ m < n}} R_{nmml} \tilde{S}_{kn} e^{i(\omega_{mn} - \omega_{ml})t} - \sum_{\substack{m < k \\ m < n}} R_{nmmk} \tilde{S}_{nl} e^{i(\omega_{mk} - \omega_{mn})t} \\ & + 2 \sum_{\substack{l < m \\ k < n}} R_{mlkn} \tilde{S}_{nm} e^{i(\omega_{lm} - \omega_{kn})t} + F_{kl}(t) \end{aligned} \quad (\text{A.32})$$

avec

$$R_{kjml} = \frac{4\pi^2 D_{kj} D_{ml} \mathbf{e}_{kj} \cdot \mathbf{e}_{ml}}{3\epsilon_0 \hbar \lambda^3} \quad (\text{A.33})$$

Ce sont les équations de Bloch-Langevin recherchées. Leur valeur moyenne donne les équations de Bloch optiques [II.60](#).

A.3 Théorème de régression quantique

Le théorème de régression quantique affirme que les fonctions de corrélation des opérateurs atomiques régressent comme les valeurs moyennes – c'est à dire qu'elles obéissent à des équations différentielles similaires aux équations de Bloch optiques.

On obtient directement à partir des équations A.32 :

$$\begin{aligned}
& \frac{\partial \langle \tilde{S}_{ij}(t + \tau) \tilde{S}_{kl}(t) \rangle}{\partial t} = \\
& \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j < l}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,jl}}{2} \langle \tilde{S}_{kj}(t + \tau) \tilde{S}_{kl}(t) \rangle e^{i(\omega_L - \omega_{jl})t} + \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j > l}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,lj}}{2} \langle \tilde{S}_{kj} \tilde{S}_{kl}(t) \rangle e^{i(\omega_{lj} - \omega_L)t} \\
& - \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j < k}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,kj}}{2} \langle \tilde{S}_{jl} \tilde{S}_{kl}(t) \rangle e^{i(\omega_{jk} - \omega_L)t} - \sum_{\substack{\text{Lasers } L \\ \text{Etats } j > k}} \frac{i\tilde{\Omega}_{L,jk}}{2} \langle \tilde{S}_{jl} \tilde{S}_{kl}(t) \rangle e^{i(\omega_L - \omega_{kj})t} \\
& - \sum_{\substack{m < l \\ m < n}} R_{nmml} \langle \tilde{S}_{kn} \tilde{S}_{kl}(t) \rangle e^{i(\omega_{mn} - \omega_{ml})t} - \sum_{\substack{m < k \\ m < n}} R_{nmmk} \langle \tilde{S}_{nl} \tilde{S}_{kl}(t) \rangle e^{i(\omega_{mk} - \omega_{mn})t} \\
& + \sum_{\substack{l < m \\ k < n}} 2R_{mlkn} \langle \tilde{S}_{nm} \tilde{S}_{kl}(t) \rangle e^{i(\omega_{lm} - \omega_{kn})t} + \langle F_{ij}(t + \tau) F_{kl}(t) \rangle
\end{aligned} \tag{A.34}$$

La difficulté est de montrer que les $F(t)$ sont bien des forces de Langevin, c'est à dire qu'elles possèdent un temps de corrélation très court devant les durées de vie des niveaux excités, de sorte que leur contribution aux équations A.34 peut être négligée. Le lecteur est renvoyé à [Cohen-Tannoudji 2001, Complément A_V] pour cette démonstration, qui est identique dans le cas d'atomes à 2 et à plusieurs niveaux.

Ecriture explicite des équations de Bloch optiques dans les configurations étudiées

L'objectif de cette annexe est de présenter explicitement les calculs réalisés pour déterminer la réponse atomique et la transmission d'un échantillon dans les configurations de pompage considérées dans ce manuscrit : gain Mollow et mélange à quatre ondes dans un système à deux niveaux, gain Raman hyperfin dans des systèmes à 4 et 5 niveaux. Essentiellement, on se contente ici d'appliquer à des configurations spécifiques des niveaux atomiques les modèles génériques développés au chapitre II.

B.1 Gain Mollow

On considère la configuration donnant lieu à du gain Mollow représentée sur la figure III.6. Un atome de rubidium 85 est éclairé par un laser pompe D quasi-résonant avec la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ et saturant, et par une sonde P de plus faible intensité. Par commodité, pour pouvoir utiliser directement les notations du chapitre II, on appellera encore $|a\rangle$ le niveau fondamental et $|b\rangle$ le niveau excité. Les pulsations de Rabi de la pompe Ω_D et de la sonde Ω_P sont respectivement données en fonction des intensités pompe I_F et sonde I_P par :

$$\begin{aligned}\Omega_D &= \sqrt{\frac{2I_D}{\epsilon_0 c}} \frac{D_{FF'}}{\hbar} \\ \Omega_P &= \sqrt{\frac{2I_P}{\epsilon_0 c}} \frac{D_{FF'}}{\hbar}\end{aligned}\tag{B.1}$$

où le dipôle de transition est donné par l'équation II.67 :

$$D_{FF'} = (-1)^{F'+J+I+1} \langle J | e r | J' \rangle \sqrt{\underline{S}_{FF'}}$$

Enfin, on introduit les notations :

$$\begin{aligned}\delta_D &= \omega_D - \omega_{FF'} \\ \delta_P &= \omega_P - \omega_{FF'} \\ \Delta_D &= \delta_D - \delta_P\end{aligned}\tag{B.2}$$

Ici, deux lasers incidents de fréquences distinctes éclairent la même transition. Pour résoudre les équations de Bloch optiques dans un tel cas, nous avons introduit le principe de décomposition en série de Floquet à une fréquence. En décomposant les solutions en une série¹ :

$$\langle S_{nm} \rangle(\mathbf{r}, t) = \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \langle S_{nm} \rangle_k(\mathbf{r}) \exp[i(k\Delta_D)t]\tag{B.3}$$

les équations de Bloch optiques II.16 se mettent sous la forme :

$$\begin{aligned}\langle S_{bb} \rangle_k &= i \left[\Omega_P (\langle S_{ba} \rangle_k - \langle S_{ab} \rangle_k) + \Omega_D (\langle S_{ba} \rangle_{(k-1)} - \langle S_{ab} \rangle_{(k+1)}) \right] / \left[\Gamma + ik\Delta_D \right] \\ \langle S_{ab} \rangle_k &= -i \left[\Omega_P (2\langle S_{bb} \rangle_k - \delta_{0k}) + \Omega_D (2\langle S_{bb} \rangle_{(k-1)} - \delta_{1k}) \right] / \left[\frac{\Gamma}{2} + i\delta_P + ik\Delta_D \right] \\ \langle S_{ba} \rangle_k &= \langle S_{ab} \rangle_{(-k)}\end{aligned}\tag{B.4}$$

Notons que les phases des lasers incidents n'interviennent pas dans la solution, de sorte que la prise en compte de phases dépendant de la position de l'atome est inutile, et que la réponse est la même pour tous les atomes du système. On inverse numériquement les équations précédentes, en tronquant la série aux ordres élevés; pour s'assurer que la troncature a lieu à un ordre suffisamment élevé, on vérifie qu'un accroissement du nombre de termes pris en compte ne provoque pas de variation importante des termes centraux (typiquement moins de 1/1000).

Pour un système à deux niveaux non dégénérés, la polarisabilité réduite à la fréquence sonde est donnée d'après par l'équation II.39 par :

$$\tilde{\alpha} = \frac{\Gamma}{\Omega_P} \langle S_{ab} \rangle_{k=0}\tag{B.5}$$

et la section efficace d'extinction de la sonde s'en déduit :

$$\sigma_{\text{ext}}(\delta) = \sigma_0 \text{Im}[\tilde{\alpha}]\tag{B.6}$$

1. On rappelle que les opérateurs S_{nm} sont eux-mêmes des opérateurs tournants à la fréquence sonde, définis par l'équation II.9

La prise en compte de la dégénérescence des niveaux conduit en fait à (paragraphe II.3.2) :

$$\sigma_{\text{ext}}(\delta) = \frac{1}{3} \frac{2J' + 1}{2J + 1} \underline{S}_{FF'} \sigma_0 \operatorname{Im} \left[\frac{\Gamma}{\Omega_P} \langle S_{ab} \rangle_{k=0} \right] \quad (\text{B.7})$$

Ainsi, la transmission de la sonde au travers d'un nuage d'atomes froids éclairé uniformément par la pompe s'écrit :

$$T = \exp \left[- \frac{\sigma_{\text{ext}}}{\sigma_0} \tilde{b}_0 \right] \quad (\text{B.8})$$

où l'on rappelle que \tilde{b}_0 est l'épaisseur optique équivalente que posséderait le système si les niveaux étaient non dégénérés. On peut encore réécrire le coefficient de transmission en fonction de l'épaisseur optique à résonance b_0 mesurée sur la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$:

$$T = \exp \left[- \frac{\sigma_{\text{ext}}}{\sigma_0} b_0 \right] \quad (\text{B.9})$$

La transmission peut donc être déterminée correctement à partir de la connaissance de la réponse d'un atome à deux niveaux et de la valeur b_0 de l'épaisseur optique mesurée directement. Toutefois, la prise en compte de la dégénérescence des niveaux est nécessaire pour le calcul correct des pulsations de Rabi qui interviennent dans les équations de Bloch optiques.

B.2 Mélange à quatre ondes

On considère la configuration de mélange à quatre ondes représentée sur la figure III.7, et on cherche à écrire les équations de Bloch optiques régissant l'évolution de la matrice densité d'un atome à deux niveaux effectifs rendant compte de la réponse d'un atome de rubidium pompé sur sa transition fermée $F = 3 \rightarrow F' = 4$. L'atome est éclairé par deux pompes D et B et une sonde P quasi résonantes avec la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$. On se place dans un cas légèrement plus général que celui considéré dans le chapitre III, puisque les fréquences de chaque pompe et de la sonde peuvent être indépendantes les unes des autres. Notons que le modèle de la réponse atomique présenté est à priori valable pour toute intensité sonde. Les équations de propagation utilisées au chapitre III, en revanche, supposent une réponse du système linéaire vis à vis de l'intensité sonde, de sorte que celle-ci doit rester faible devant les intensités pompes ou l'intensité de saturation de la transition considérée.

Les pulsations de Rabi des différents faisceaux sont calculées comme dans le cas du gain Mollow, mais en incluant en plus un terme de phase qui nous permet de rendre compte

de la dépendance spatiale de la réponse de l'atome :

$$\tilde{\Omega}_{D,B,P} = \sqrt{\frac{2I_{D,B,P}}{\epsilon_0 c}} \frac{D_{FF'}}{\hbar} e^{-i\mathbf{k}_{D,B,P} \cdot \mathbf{r}} \quad (\text{B.10})$$

En présence de trois laser indépendants, il nous faut utiliser une décomposition en série de Floquet à deux fréquences pour résoudre numériquement les équations de Bloch optiques. En notant :

$$\begin{aligned} \delta_P &= \omega_P - \omega_{FF'} \\ \Delta_D &= \omega_D - \omega_P \\ \Delta_B &= \omega_B - \omega_P \end{aligned} \quad (\text{B.11})$$

les solutions recherchées se mettent sous la forme :

$$\langle S_{nm} \rangle(\mathbf{r}, t) = \sum_{k,l=-\infty}^{+\infty} \langle S_{nm} \rangle_{kl}(\mathbf{r}) \exp[i(k\Delta_D + l\Delta_B)t] \quad (\text{B.12})$$

Les équations de Bloch optiques s'écrivent alors :

$$\begin{aligned} \langle S_{bb} \rangle_{kl} &= i \left[\tilde{\Omega}_P (\langle S_{ba} \rangle_{kl} - \langle S_{ab} \rangle_{kl}) + \tilde{\Omega}_D (\langle S_{ba} \rangle_{(k-1)l} - \langle S_{ab} \rangle_{(k+1)l}) \right. \\ &\quad \left. + \tilde{\Omega}_B (\langle S_{ba} \rangle_{k(l-1)} - \langle S_{ab} \rangle_{k(l+1)}) \right] / \left[\Gamma + ik\Delta_D + il\Delta_B \right] \\ \langle S_{ab} \rangle_{kl} &= -i \left[\tilde{\Omega}_P (2\langle S_{bb} \rangle_{kl} - \delta_{0k}\delta_{0l}) + \tilde{\Omega}_D (2\langle S_{bb} \rangle_{(k-1)l} - \delta_{1k}\delta_{0l}) \right. \\ &\quad \left. + \tilde{\Omega}_B (2\langle S_{bb} \rangle_{k(l-1)} - \delta_{0k}\delta_{1l}) \right] / \left[\frac{\Gamma}{2} + i\delta_P + ik\Delta_D + il\Delta_B \right] \\ \langle S_{ba} \rangle_{kl} &= \langle S_{ab} \rangle_{(-k)(-l)} \end{aligned} \quad (\text{B.13})$$

Les polarisabilités linéaires et non linéaires qui nous permettent de calculer les coefficients de transmission et de réflexion de la sonde sont alors données par :

$$\begin{aligned} \alpha^{(1)}(\omega_P) &= \frac{6\pi}{k_0} \frac{\Gamma}{\Omega_P} \frac{1}{V} \lim_{V \rightarrow +\infty} \int_V \langle S_{ab} \rangle_{00}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}_P \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \\ \alpha^{(3)}(\omega_D, \omega_B, -\omega_P) &= \frac{6\pi}{k_0} \frac{\Gamma}{\Omega_P} \frac{1}{V} \lim_{V \rightarrow +\infty} \int_V \langle S_{ab} \rangle_{11}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}_P \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \end{aligned} \quad (\text{B.14})$$

En pratique, l'intégration est bien sur réalisée sur un volume V arbitraire. On constate que, lorsque la fréquence sonde n'est égale ni à la fréquence d'une pompe, ni à la fréquence du conjugué, les fonctions $\langle S_{ab} \rangle_{00}(\mathbf{r})$ et $\langle S_{ab} \rangle_{11}(\mathbf{r})$ ne possèdent qu'une composante de Fourier spatiale. Le calcul de la réponse atomique en un point suffit alors à caractériser le système.

Cette fois, nous n'avons pas tenu compte de la dégénérescence des niveaux dans le calcul des polarisabilités linéaire et non linéaire. Simplement, le calcul des coefficients de transmission et de réflexion sera effectué en prenant pour l'épaisseur optique du milieu la valeur b_0 mesurée sur la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$. Ce calcul est explicité dans le chapitre III; notons qu'il n'est valable que dans la situation d'une sonde et d'un conjugué symétriques (de part et d'autre de la résonance atomique) présentée sur la figure III.7, du fait que nous avons supposé égaux les coefficients de réponse $\alpha^{(1)}(\omega)$ et $\alpha(\omega) = \alpha^{(3)}(\omega_D, \omega_B, \omega_P)$ aux fréquences sonde et conjugué.

B.3 Gain Raman Hyperfin : modèles 4 à 5 niveaux

Nous l'avons vu, du gain Raman peut être obtenu en créant une inversion de population entre les niveaux hyperfins fondamentaux du rubidium 85. Plusieurs niveaux excités peuvent être utilisés pour obtenir du gain. Ici, on considère la situation présentée sur la figure B.1 et on reprend les notations du paragraphe II.3.1.

On utilise les équations de Bloch-optiques II.60, en introduisant le changement de va-

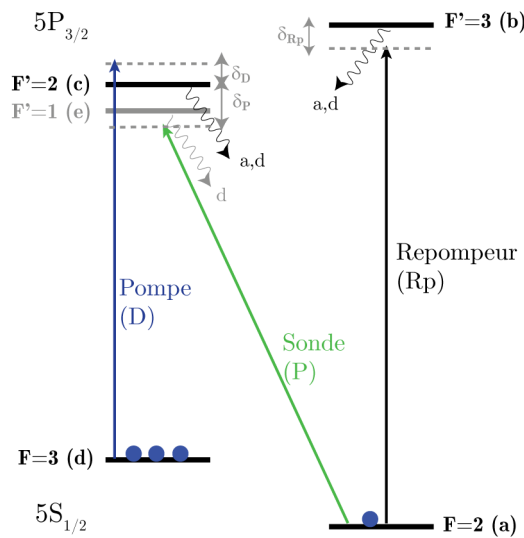


Figure B.1 – Configuration de gain Raman Hyperfin considérée.

riables :

$$\begin{aligned}
S_{ii} &= \tilde{S}_{ii} \forall i \\
S_{ab} &= \tilde{S}_{ab} e^{-i\delta_{Rp}t}; \quad S_{ac} = \tilde{S}_{ac} e^{-i\delta_P t}; \quad S_{ad} = \tilde{S}_{ad} e^{-i(\delta_P - \delta_D)t}; \quad S_{ae} = \tilde{S}_{ae} e^{-i(\delta_P - \omega_{ce})t} \\
S_{bc} &= \tilde{S}_{bc} e^{-i(\delta_P - \delta_{Rp})t}; \quad S_{bd} = \tilde{S}_{bd} e^{-i(\delta_P - \delta_{Rp} - \delta_D)t}; \quad S_{be} = \tilde{S}_{be} e^{-i(\delta_P - \omega_{ce} - \delta_D)t} \\
S_{cd} &= \tilde{S}_{cd} e^{i\delta_D t}; \quad S_{ce} = \tilde{S}_{ce} e^{i\omega_{ce}t} \\
S_{de} &= \tilde{S}_{de} e^{-i(\delta_D - \omega_{ce})t}
\end{aligned} \tag{B.15}$$

Dans l'approximation des transitions indépendantes - qui n'est toutefois pas appliquée aux transitions ac et ae - et en utilisant le fait que le total des populations se conserve, on peut mettre les équations de Bloch optiques sous la forme :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \langle S_{aa} \rangle}{\partial t} &= \Gamma t_{ba} \langle S_{bb} \rangle + \Gamma t_{ca} \langle S_{cc} \rangle + \Gamma S_{ee} + i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{ab} \rangle - i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{ba} \rangle + i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{ac} \rangle + i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{ca} \rangle + i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{ae} \rangle \\
&\quad - i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{ea} \rangle + 2R_{acae} \langle S_{ce} \rangle + 2R_{acae} \langle S_{ec} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{bb} \rangle}{\partial t} &= -\Gamma \langle S_{bb} \rangle - i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{ab} \rangle + i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{ba} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{cc} \rangle}{\partial t} &= -\Gamma \langle S_{cc} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{ac} \rangle + i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{ca} \rangle + i \frac{\Omega_{D,ac}}{2} \langle S_{cd} \rangle - i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{dc} \rangle - R_{acae} \langle S_{ce} \rangle - R_{acae} \langle S_{ec} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{ee} \rangle}{\partial t} &= -\Gamma \langle S_{ee} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{ae} \rangle + i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{ea} \rangle - R_{acae} \langle S_{ce} \rangle - R_{acae} \langle S_{ec} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{ab} \rangle}{\partial t} &= i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{aa} \rangle - i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{bb} \rangle - i\delta_{Rp} - \frac{\Gamma}{2} \langle S_{ab} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{cb} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{eb} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{ac} \rangle}{\partial t} &= i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{aa} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{cc} \rangle - i\delta_P - \frac{\Gamma}{2} \langle S_{ac} \rangle + i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{ad} \rangle - i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{bc} \rangle - R_{acae} \langle S_{ae} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{ec} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{ad} \rangle}{\partial t} &= i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{ac} \rangle - i(\delta_P - \delta_D) \langle S_{ad} \rangle - i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{bd} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{cd} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{ed} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{bc} \rangle}{\partial t} &= i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{ba} \rangle - i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{ac} \rangle + (i(\delta_{Rp} - \delta_P) - \Gamma) \langle S_{bc} \rangle + i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{bd} \rangle - R_{acae} \langle S_{be} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{bd} \rangle}{\partial t} &= -i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{ad} \rangle + i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{bc} \rangle + (-i(\delta_P - \delta_{Rp} - \delta_D) - \frac{\Gamma}{2}) \langle S_{bd} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{cd} \rangle}{\partial t} &= i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{aa} \rangle + i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{bb} \rangle + i\Omega_D \langle S_{cc} \rangle + i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{ee} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{ad} \rangle + (i\delta_D - \frac{\Gamma}{2}) \langle S_{cd} \rangle - R_{acae} \langle S_{de} \rangle - i \frac{\Omega_D}{2} \\
\frac{\partial \langle S_{ae} \rangle}{\partial t} &= i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{aa} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{ee} \rangle - R_{acae} \langle S_{ac} \rangle + (-i(\delta_P - \omega_{ce}) - \frac{\Gamma}{2}) \langle S_{ae} \rangle - i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{be} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{ce} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{be} \rangle}{\partial t} &= i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{ba} \rangle - R_{acae} \langle S_{bc} \rangle - i \frac{\Omega_{Rp}}{2} \langle S_{ae} \rangle + (i(\delta_{Rp} - \delta_P + \omega_{ce}) - \Gamma) \langle S_{be} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{ce} \rangle}{\partial t} &= -R_{acae} \langle S_{cc} \rangle - R_{acae} \langle S_{ee} \rangle + i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{ca} \rangle - i \frac{\Omega_{P,ac}}{2} \langle S_{ae} \rangle + (i\omega_{ce} - \Gamma) \langle S_{ce} \rangle - i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{de} \rangle \\
\frac{\partial \langle S_{de} \rangle}{\partial t} &= i \frac{\Omega_{P,ae}}{2} \langle S_{da} \rangle - R_{acae} \langle S_{dc} \rangle - i \frac{\Omega_D}{2} \langle S_{ce} \rangle + (i(-\delta_D + \omega_{ce}) - \frac{\Gamma}{2}) \langle S_{de} \rangle
\end{aligned} \tag{B.16}$$

Les valeurs des paramètres qui interviennent dans ces équations dépendent du modèle considéré (niveaux effectifs dégénérés ou niveaux non dégénérés). Elles sont explicitées ci-dessous. Les termes grisés sont à prendre en compte dans un modèle à 5 niveaux, omis dans un modèle 4 niveaux. La solution de ces équations en régime stationnaire peut être obtenue simplement, en résolvant numériquement le système linéaire obtenu en imposant l'annulation des dérivées ci-dessus.

Modèle de niveaux effectifs dégénérés

Pour les calculs de transmission, on utilise un modèle de niveaux effectifs dégénérés, qui permet d'obtenir la section efficace d'extinction pondérée par le facteur numérique adéquat.

La taux de désexcitation est le même pour tous les niveaux excités : $\Gamma = 2\pi \times 6.066\text{MHz}$. Les facteurs t_{ba} et t_{ca} qui apparaissent dans les équations de Bloch optiques ci-dessus sont les rapports de branchement indiquant respectivement la fraction des populations des niveaux b et c se désexcitant vers le niveau a . Ils sont calculés à partir de l'équation II.65 : $t_{ba} = 0.4444$ et $t_{ca} = 0.7778$. $\Omega_{P,ac}$ et $\Omega_{P,ae}$ sont les pulsations de Rabi de la sonde par rapport aux transitions ac et ae , calculées en utilisant le dipôle réduit associé à ces transitions (équation II.66). On détermine de même les pulsations de Rabi Ω_D et Ω_{Rp} de la pompe par rapport à la transition dc et du repompeur par rapport à la transition ab . D'après l'équation II.64, le terme de transfert de cohérence R_{acae} est donné par :

$$R_{acae} = \frac{\Gamma}{2} \sqrt{\frac{(2F_c + 1)(2F_e + 1)}{(2F_a + 1)^2}} \underline{S}_{ac} \underline{S}_{ae} = \sqrt{\frac{7}{400}} \Gamma \quad (\text{B.17})$$

F_i désigne le nombre quantique de moment cinétique du niveau $|i\rangle$; les facteurs de transition $\underline{S}_{FF'}$ sont tabulés dans la littérature [Steck 2008]. Ici :

$$S_{ac} = 7/18 \quad S_{ae} = 3/10 \quad S_{dc} = 5/63 \quad S_{ab} = 14/45 \quad S_{db} = 5/18;$$

En prenant en compte la dégénérescence des niveaux, la section efficace d'extinction de la sonde est alors donnée par :

$$\sigma_{\text{ext}}(\delta_P) = \frac{1}{3} \frac{2J' + 1}{2J + 1} \sigma_0 \Gamma \text{Im} \left[\frac{\underline{S}_{ac}}{\Omega_{P,ac}} \langle S_{ac} \rangle + \frac{\underline{S}_{ae}}{\Omega_{P,ae}} \langle S_{ae} \rangle \right] \quad (\text{B.18})$$

C'est à partir de cette section efficace que sont calculées les courbes de transmission présentées sur les figures III.8 et III.9.

Modèle de niveaux non dégénérés

Si l'on suppose les niveaux atomiques non dégénérés, tous les facteurs intervenant dans les équations de Bloch optiques sont déterminés pas la connaissance des rapports de branchement et des durées de vie des niveaux excités. On fixe donc :

$$\Gamma = 2\pi \times 6.066\text{MHz} \quad t_{ba} = 0.4444 \quad t_{ca} = 0.7778 \quad t_{ea} = 1 \quad (\text{B.19})$$

Le dipôle de transition associé à la transition FF' est alors donné par :

$$D_{FF'} = (-1)^{F'+J+I+1} D_0 \sqrt{t_{FF'}} \quad (\text{B.20})$$

avec $J = 1/2, I = 5/2$, et :

$$D_0 = \sqrt{\frac{3\epsilon_0\lambda^3}{8\pi^2}}\Gamma \quad (\text{B.21})$$

A partir des dipôles de transition [B.20](#), on calcule les pulsations de Rabi des faisceaux incidents et le terme de transfert de cohérence R_{acae} :

$$R_{acae} = -\frac{\Gamma}{2}\sqrt{t_{ca}} \quad (\text{B.22})$$

Finalement, la polarisabilité atomique réduite à la fréquence ω_P est donnée en fonction de la solution stationnaire des équations de Bloch optiques par :

$$\tilde{\alpha}(\omega_P) = \Gamma \left[\frac{t_{ca}}{\Omega_{P,ac}} \langle S_{ac} \rangle + \frac{t_{ea}}{\Omega_{P,ae}} \langle S_{ae} \rangle \right] \quad (\text{B.23})$$

Cette polarisabilité est utilisée pour estimer le seuil du laser aléatoire au paragraphe [III.3.2](#).

Publications

Threshold of a random laser based on Raman gain in cold atoms

W. Guerin, N. Mercadier, D. Brivio and R. Kaiser

Opt. Express, **17**, 13, 2009

Lévy flights of photons in hot atomic vapours

N. Mercadier, M. Chevrollier, W. Guerin and R. Kaiser

Nat. Phys. **5**, 602, 2009

Towards a random laser with cold atoms

W. Guerin, N. Mercadier, F. Michaud, D. Brivio, L. S. Froufe-Pérez, R. Carminati, V. Eremeev, A. Goetschy, S. E. Skipetrov and R. Kaiser

J. Opt. **12**, 024002, 2010

Anomalous photon diffusion in atomic vapors

M. Chevrollier, N. Mercadier, W. Guerin and R. Kaiser

E.P.J.D. **2**, 58, 2010

Nomenclature

| | | | |
|--------------------|--|--|---|
| \mathcal{B} | Matrice de Bloch | D_{kl} | Dipôle de transition kl (élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire, éventuellement réduit) |
| \tilde{b}_0 | Epaisseur optique de référence qu'aurait l'échantillon considéré si tous les atomes possédaient une section efficace d'extinction σ_0 | \mathbf{E} | Champ électrique |
| b | Epaisseur optique | \mathbf{E}^+ | Opérateur champ associé aux fréquences positives (donc aux opérateurs annihilation) |
| b_0 | Epaisseur optique à résonance du milieu passif - pour un nuage de rubidium 85, mesurée sur la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ | \mathbf{E}^- | Opérateur champ associé aux fréquences négatives (donc aux opérateurs création) |
| B_{ij} | Coefficient d'Einstein associé à la transition ij | \mathbf{E}_d | Champ diffusé |
| c_0 | Célérité de la lumière dans le vide | \mathbf{E}_j | Champ électrique créé par l'onde plane j |
| $\hat{\mathbf{D}}$ | Opérateur moment dipolaire | $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z$ | Base de vecteurs unitaires orthonormés de l'espace |
| \mathbf{D}^+ | Opérateur moment dipolaire associé aux processus de gain d'énergie par l'atome | $\mathbf{e}_{-1}, \mathbf{e}_0, \mathbf{e}_{+1}$ | Base standard des polarisations |
| \mathbf{D}^- | Opérateur moment dipolaire associé aux processus de perte d'énergie par l'atome | \mathbf{e}_{kl} | Vecteur polarisation associé à la transition kl |
| \mathcal{D} | Coefficient de diffusion | e | Charge de l'électron |
| D | En indice, réfère à un faisceau pompe | F | Nombre quantique de moment angulaire total, caractérisant un niveau hyperfin |
| d | Dimension de l'espace / Moment dipolaire | \hbar | Constante de Planck réduite |
| | | H | Hamiltonien |
| | | H_A | Hamiltonien de l'atome isolé |
| | | \hat{I} | Opérateur Intensité |
| | | I_ω | Intensité à la pulsation ω |

| | | | |
|-------------------------------------|--|----------------------------|--|
| $I_{P,D}$ | Intensité des faisceaux P, D... | P_{tot} | Puissance totale émise |
| \mathbf{j} | Densité de courant | R_p | En indice, réfère à un faisceau repompeur |
| J | Nombre quantique de moment angulaire, caractérisant un niveau fin | \mathbf{q} | Vecteur flux radiatif |
| \mathbf{k}_j | Vecteur d'onde de l'onde plane j | Q | Distribution de la durée des pas d'une marche aléatoire |
| k_0 | Vecteur d'onde (norme) | \mathbf{r}, \mathbf{r}_d | Vecteur position |
| k_B | Constante de Boltzmann | R | Rayon d'un échantillon |
| l_{abs} | Longueur d'absorption | R_I, R_{II} | Fonctions de redistribution conjointes |
| l_{ext} | Longueur d'extinction | R_{jklm} | Terme de relaxation des équations de Bloch optiques |
| l_{sc} | Libre parcours moyen de diffusion | Re | Coefficient de réflexion |
| L_ω | Luminance (à la pulsation ω) | \mathcal{S} | Vecteur des opérateurs \mathcal{S}_{ij} |
| m | Masse d'un atome | \mathcal{S}_{ij} | Opérateur $ j\rangle\langle i $ de transition entre les niveaux atomiques $ i\rangle$ et $ j\rangle$ |
| N | Nombre d'atomes dans un échantillon | \tilde{S}_{ij} | Opérateur atomique de transition entre les niveaux atomiques $ i\rangle$ et $ j\rangle$, tournant à la fréquence de la transition ij |
| n | Indice optique d'un milieu | $\underline{S}_{FF'}$ | Facteur de transition FF' |
| n_0 | Densité d'atomes dans un gaz | dS | Élément de surface |
| \mathcal{P} | Polarisation (d'un atome) | S | Terme source de l'équation de la diffusion |
| P | Distribution de la taille des pas d'une marche aléatoire | s | Abscisse curviligne / Paramètre de saturation |
| P | En indice, réfère au faisceau sonde | S_{ij} | Opérateur atomique de transition entre les niveaux atomiques $ i\rangle$ et $ j\rangle$, tournant à la fréquence du laser excitant la transition ij |
| P_x | Distribution régissant la distance parcourue selon un axe arbitraire Ox lors d'un pas d'une marche aléatoire | T | Coefficient de transmission |
| $p_\omega(\mathbf{u}, \mathbf{u}')$ | Fonction de phase | | |
| $P_{M,1}, P_{M,2}$ | Distribution de Maxwell d'une (resp. 2) composante(s) de la vitesse | | |

| | | | |
|-----------------------------|---|------------------------------|--|
| T | Température | $\delta_D, \delta_P, \dots$ | Désaccord du faisceau D, P, ... par rapport à la transition qu'il excite |
| t | Temps | ϵ | Permittivité diélectrique (d'un milieu matériel) |
| \mathbf{u} | Direction de l'espace | ϵ_0 | Permittivité diélectrique du vide |
| u | Densité spectrale d'énergie | η_ω | Coefficient d'émission |
| \mathbf{v} | Vitesse d'un atome | Γ | Taux de désexcitation d'un niveau |
| v_E | Vitesse de l'énergie | Γ_{kl} | Taux de désexcitation du niveau l vers le niveau k |
| v_x | Vitesse d'un atome selon l'axe Ox | $\kappa_{\text{abs},\omega}$ | Coefficient d'absorption de la luminance |
| W_{tot} | Puissance totale diffusée par un atome | $\kappa_{\text{ext},\omega}$ | Coefficient d'extinction |
| α | Coefficient caractérisant la décroissance asymptotique de la distribution de la taille des pas d'une marche aléatoire : $P(x) \sim x^{-\alpha}$ | $\kappa_{\text{sc},\omega}$ | Coefficient de diffusion de la luminance |
| α | Polarisabilité | λ_0 | Longueur d'onde de transition |
| $\alpha^{(i)}$ | Polarisabilité non linéaire d'ordre i | λ | Second membre des EBO |
| α_l | Paramètre de décroissance asymptotique d'une loi de Lévy | μ | Perméabilité magnétique (d'un milieu matériel) |
| $\tilde{\alpha}$ | Polarisabilité réduite | Φ | Densité de probabilité de présence d'une particule |
| $\Delta \mathbf{r}$ | Déplacement effectué lors d'un pas d'une marche aléatoire | Φ_{α_l} | Distribution de Lévy de paramètre α_l |
| $\Delta \omega_D$ | Largeur Doppler | Ψ | Profil d'absorption |
| $\Delta \tau$ | Durée d'un pas d'une marche aléatoire | ρ | Matrice densité |
| Δx | Distance parcourue selon un axe Ox lors d'un pas d'une marche aléatoire | σ_0 | Section efficace de diffusion d'un atome à deux niveaux passif éclairé à résonance |
| $\Delta_D, \Delta_B, \dots$ | Désaccord du faisceau D, B, ... par rapport à une référence de fréquence arbitraire (en général, la fréquence du faisceau sonde P) | σ_g | Section efficace de gain |
| | | σ_{abs} | Section efficace d'absorption |

| | |
|---------------------------------------|---|
| σ_{ext} | Section efficace d'extinction |
| σ_{sc} | Section efficace de diffusion |
| Θ | Profil d'émission atomique |
| ω_j | Pulsation de l'onde j |
| ω | Pulsation |
| ω_0 | Pulsation de résonance |
| ω_{kl} | Pulsation de résonance de la transition kl |
| $\Omega_D, \Omega_P, \dots$ | Pulsation de Rabi du faisceau D, P, ... |
| $\Omega_{D,kl}, \Omega_{P,kl}, \dots$ | Pulsation de Rabi du faisceau D, P, ... vis à vis de la transition kl |
| $\tilde{\Omega}_{D,kl}(\mathbf{r})$ | Pulsation de Rabi complexe du faisceau D au point \mathbf{r} , incluant un terme de phase |
| $d\Omega$ | Angle solide élémentaire |

Bibliographie

- [Abrams 1978a] R. L. Abrams & R. C. Lind. *Degenerate four-wave mixing in absorbing media*. *Optics letters*, Vol. **2**, No. 4, p. 94–96, 1978.
- [Abrams 1978b] R. L. Abrams & R. C. Lind. *Degenerate four-wave mixing in absorbing media : errata*. *Optics letters*, Vol. **3**, No. 5, p. 205, 1978.
- [Agarwal 1971] G. Agarwal. *Rotating-Wave Approximation and Spontaneous Emission*. *Physical Review A*, Vol. **4**, No. 5, p. 1778–1781, 1971.
- [Akulshin 2009] A. M. Akulshin, R. J. McLean, A. I. Sidorov, & P. Hannaford. *Coherent and collimated blue light generated by four-wave mixing in Rb vapour*. *Optics express*, Vol. **17**, No. 25, p. 22861–70, 2009.
- [Allen 1987] L. Allen & J. H. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. Courier Dover Publications, 1987.
- [Alves-Pereira 2007] R. Alves-Pereira, E. J. Nunes-Pereira, J. M. G. Martinho, & M. N. Berberan-Santos. *Photonic superdiffusive motion in resonance line radiation trapping Partial frequency redistribution effects*. *The Journal of chemical physics*, Vol. **126**, No. 15, p. 154505, 2007.
- [Anderson 1958] P. Anderson. *Absence of Diffusion in Certain Random Lattices*. *Physical Review*, Vol. **109**, No. 5, p. 1492–1505, 1958.
- [Apalkov 2002] V. Apalkov, M. Raikh, & B. Shapiro. *Random Resonators and Prelocalized Modes in Disordered Dielectric Films*. *Physical Review Letters*, Vol. **89**, No. 1, p. 2–5, 2002.
- [Aronson 1999] R. Aronson & N. Corngold. *Photon diffusion coefficient in an absorbing medium*. *Journal of the Optical Society of America A*, Vol. **16**, No. 5, p. 1066–71, 1999.
- [Ayala-Orozco 2004] B. Ayala-Orozco, G. Cocho, H. Larralde, G. Ramos-Fernandez, J. L. Mateos, & O. Miramontes. *Lévy walk patterns in the foraging movements of spider monkeys (Ateles geoffroyi)*. *Beha-*

- vioral Ecology and Sociobiology, Vol. **55**, No. 3, p. 223–230, 2004.
- [Baillard 2006] X. Baillard, a. Gauguet, S. Bize, P. Lemonde, P. Laurent, a. Clairon, & P. Rosenbusch. *Interference-filter-stabilized external-cavity diode lasers*. *Optics Communications*, Vol. **266**, No. 2, p. 609–613, 2006.
- [Barabanenkov 1968] Y. N. Barabanenkov & V. M. Finkel’Berg. *Radiation Transport Equation for Correlated Scatterers*. *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics*, Vol. **26**, p. 587, 1968.
- [Barthelemy 2008] P. Barthelemy, J. Bertolotti, & D. S. Wiersma. *A Lévy flight for light*. *Nature*, Vol. **453**, No. 7194, p. 495–8, 2008.
- [Barthelemy 2010] P. Barthelemy, J. Bertolotti, K. Vynck, S. Lepri, & D. Wiersma. *Role of quenching on superdiffusive transport in two-dimensional random media*. *Physical Review E*, Vol. **82**, No. 1, 2010.
- [Beeler 2003] M. Beeler, R. Stites, S. Kim, L. Feeney, & S. Bali. *Sensitive detection of radiation trapping in cold-atom clouds*. *Physical Review A*, Vol. **68**, No. 1, p. 1–6, 2003.
- [Berberan-Santos 2006] M. N. Berberan-Santos, E. J. Nunes-Pereira, & J. M. G. Martinho. *Photonic superdiffusive motion in resonance line radiation trapping*. *The Journal of chemical physics*, Vol. **125**, No. 17, p. 174308, 2006.
- [Bertolotti 2007] J. Bertolotti. *Light transport beyond diffusion*. Thèse de Doctorat, Università degli Studi di Firenze, 2007.
- [Bertolotti 2010] J. Bertolotti, K. Vynck, L. Pattelli, P. Barthelemy, S. Lepri, & D. S. Wiersma. *Engineering Disorder in Superdiffusive Lévy Glasses*. *Advanced Functional Materials*, Vol. **20**, No. 6, p. 965–968, 2010.
- [Bertrand 2005] S. Bertrand, J. Burgos, F. Gerlotto, & J. Atiquipa. *Lévy trajectories of Peruvian purse-seiners as an indicator of the spatial distribution of anchovy*. *ICES Journal of Marine Science*, Vol. **62**, No. 3, p. 477–482, 2005.
- [Bienaimé 2010] T. Bienaimé, S. Bux, E. Lucioni, P. W. Courteille, N. Piovella, & R. Kaiser. *Observation of a Cooperative Radiation Force in the Presence of Disorder*. *Physical Review Letters*, Vol. **104**, No. 18, p. 7–10, 2010.
- [Biot 1957] M. Biot. *General Theorems on the Equivalence of Group Velocity and Energy Transport*. *Physical Review*, Vol. **105**, No. 4, p. 1129–1137, 1957.

- [Bittencourt 2004] J. A. Bittencourt. *Fundamentals of plasma physics*. Springer, 2004.
- [Bloch 1940] F. Bloch & A. Siegert. *Magnetic Resonance for Nonrotating Fields*. *Physical Review*, Vol. **57**, No. 6, p. 522–527, 1940.
- [Bloom 1977] D. M. Bloom & G. C. Bjorklund. *Conjugate wave-front generation and image reconstruction by four-wave mixing*. *Applied Physics Letters*, Vol. **31**, No. 9, p. 592, 1977.
- [Bouchaud 2000] J.-P. Bouchaud & M. Potters. *Theory of Financial Risks : From Statistical Physics to Risk Management*. Cambridge University Press, 2000.
- [Bouguer 1729] P. Bouguer. *Essai D’Optique, Sur La Gradation de La Lumiere*. Broché, 1729.
- [Bowie 2000] J. Bowie, J. Garrison, & R. Chiao. *Stimulated Raman gain in a Λ -type atomic system with doubly excited transitions*. *Physical Review A*, Vol. **61**, No. 5, p. 053811, 2000.
- [Boyd 1981] R. Boyd, M. Raymer, P. Narum, & D. Harter. *Four-wave parametric interactions in a strongly driven two-level system*. *Physical Review A*, Vol. **24**, No. 1, p. 411–423, 1981.
- [Boyd 2008] R. W. Boyd. *Nonlinear optics*. Academic Press, 2008.
- [Brink 1994] D. M. Brink & G. R. Satchler. *Angular Momentum*. Oxford University Press, USA, 1994.
- [Brzozowski 2005] T. Brzozowski, M. Brzozowska, J. Zachorowski, M. Zawada, & W. Gawlik. *Probe spectroscopy in an operating magneto-optical trap : The role of Raman transitions between discrete and continuum atomic states*. *Physical Review A*, Vol. **71**, No. 1, 2005.
- [Budker 2004] D. Budker, D. F. Kimball, & D. P. DeMille. *Atomic physics : an exploration through problems and solutions*. Oxford University Press, 2004.
- [Cannon 1985] C. J. Cannon. *The transfer of spectral line radiation*. Cambridge University Press, 1985.
- [Cao 1998] H. Cao, Y. G. Zhao, H. C. Ong, S. T. Ho, J. Y. Dai, J. Y. Wu, & R. P. H. Chang. *Ultraviolet lasing in resonators formed by scattering in semiconductor polycrystalline films*. *Applied Physics Letters*, Vol. **73**, No. 25, p. 3656, 1998.
- [Cao 1999] H. Cao, Y. Zhao, S. Ho, E. Seelig, Q. Wang, & R. Chang. *Random laser action in semiconductor powder*. *Physical Review Letters*, Vol. **82**, No. 11, p. 2278–2281, 1999.

- [Cao 2000] H. Cao, J. Xu, S. Chang, & S. Ho. *Transition from amplified spontaneous emission to laser action in strongly scattering media*. *Physical Review E*, Vol. **61**, No. 2, p. 1985–1989, 2000.
- [Cao 2001] H. Cao, Y. Ling, J. Xu, C. Cao, & P. Kumar. *Photon statistics of random lasers with resonant feedback*. *Physical Review Letters*, Vol. **86**, No. 20, p. 4524–4527, 2001.
- [Cao 2003] H. Cao. *Lasing in random media*. *Waves in Random Media*, Vol. **13**, No. 3, p. R1–R39, 2003.
- [Cardimona 1982] D. Cardimona, M. Raymer, & S. CR Jr. *Steady-state quantum interference in resonance fluorescence*. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, Vol. **15**, p. 55, 1982.
- [Cardimona 1983] D. Cardimona & C. Stroud Jr. *Spontaneous radiative coupling of atomic energy levels*. *Physical Review A*, Vol. **27**, No. 5, p. 2456–2461, 1983.
- [Case 1967] K. M. Case & P. F. Zweifel. *Linear transport theory*. Addison-Wesley Pub. Co., 1967.
- [Chandrasekhar 1960] S. Chandrasekhar. *Radiative transfer*. Courier Dover Publications, 1960.
- [Chen 1957] S. Chen & M. Takeo. *Broadening and shift of spectral lines due to the presence of foreign gases*. *Reviews of Modern Physics*, Vol. **29**, No. 1, p. 20, 1957.
- [Chevrollier 2010] M. Chevrollier, N. Mercadier, W. Guerin, & R. Kaiser. *Anomalous photon diffusion in atomic vapors*. *The European Physical Journal D*, Vol. **58**, No. 2, p. 161–165, 2010.
- [Cohen-Tannoudji 2001] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, & G. Grynberg. *Processus d’interaction entre photons et atomes*. EDP Sciences, 2001.
- [Compton 1922] K. Compton. *Theory of ionization by cumulative action and the low voltage arc*. *Physical Review*, Vol. **20**, No. 4, p. 283, 1922.
- [Compton 1923] K. Compton. *Some properties of resonance radiation and excited atoms*. *Philosophical Magazine*, Vol. **45**, p. 752, 1923.
- [Cwilich 1992] G. Cwilich & F. Yaotian. *Scattering delay and renormalization of the wave-diffusion constant*. *Physical Review B*, Vol. **46**, No. 18, p. 12015–12018, 1992.
- [Dalibard 2006] J. Dalibard. *Atomes ultra-froids*. Cours de DEA, 2006.
- [Eckhardt 1962] G. Eckhardt, R. Hellwarth, F. McClung, S. Schwarz, D. Weiner, & E. Woodbury. *Stimulated Raman Scattering From Organic*

- Liquids*. *Physical Review Letters*, Vol. **9**, No. 11, p. 455–457, 1962.
- [Eckhardt 1963] G. Eckhardt, D. P. Bortfeld, & M. Geller. *Stimulated Emission of Stokes and anti-Stokes Raman Lines from Diamond, Calcite, and α -Sulfur single Crystals*. *Applied Physics Letters*, Vol. **3**, No. 8, p. 137, 1963.
- [Edwards 2007] A. M. Edwards, R. A. Phillips, N. W. Watkins, M. P. Freeman, E. J. Murphy, V. Afanasyev, S. V. Buldyrev, M. G. E. da Luz, E. P. Raposo, H. E. Stanley, & G. M. Viswanathan. *Revisiting Lévy flight search patterns of wandering albatrosses, bumblebees and deer*. *Nature*, Vol. **449**, No. 7165, p. 1044–8, 2007.
- [Elaloufi 2003] R. Elaloufi, R. Carminati, & J. Greffet. *Definition of the diffusion coefficient in scattering and absorbing media*. *JOSA A*, Vol. **20**, No. 4, p. 678–685, 2003.
- [Fallert 2009] J. Fallert, R. J. B. Dietz, J. Sartor, D. Schneider, C. Klingshirn, & H. Kalt. *Co-existence of strongly and weakly localized random laser modes*. *Methods*, Vol. **3**, No. April, p. 279–282, 2009.
- [Fauquembergue 2004] M. Fauquembergue. *Réalisation d'un dispositif de condensation de Bose-Einstein et de transport d'un échantillon cohérent d'atomes*. Thèse de Doctorat, Université Paris XI, 2004.
- [Ficek 1993] Z. Ficek & H. Freedhoff. *Resonance-fluorescence and absorption spectra of a two-level atom driven by a strong bichromatic field*. *Physical Review A*, Vol. **48**, No. 4, p. 3092–3104, 1993.
- [Fleischhauer 2005] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, & J. Marangos. *Electromagnetically induced transparency : Optics in coherent media*. *Reviews of Modern Physics*, Vol. **77**, No. 2, p. 633–673, 2005.
- [Frank 2009] R. Frank, A. Lubatsch, & J. Kroha. *Light transport and localization in diffusive random lasers*. *Journal of Optics A*, Vol. **11**, No. 11, p. 114012, 2009.
- [Frolov 1999] S. Frolov, Z. Vardeny, K. Yoshino, a. Zakhidov, & R. Baughman. *Stimulated emission in high-gain organic media*. *Physical Review B*, Vol. **59**, No. 8, p. R5284–R5287, 1999.
- [Froufe-Pérez 2009] L. Froufe-Pérez, W. Guerin, R. Carminati, & R. Kaiser. *Threshold of a Random Laser with Cold Atoms*. *Physical Review Letters*, Vol. **102**, No. 17, p. 1–4, 2009.
- [Gattobigio 2002] G. L. Gattobigio. *Coherent Back-Scattering e atomi freddi di Strozio*, Tesi di Laurea, 2002.
- [Gattobigio 2008] G. L. Gattobigio. *Manipulation of a Large Magneto-Optical Trap : application to Four-Wave Mixing*. Thèse de Doctorat, Università degli Studi di Ferrara, 2008.

- [Gerasik 2010] V. Gerasik & M. Stastna. *Complex group velocity and energy transport in absorbing media*. [Physical Review E](#), Vol. **81**, No. 5, p. 056602, 2010.
- [Gnedenko 1954] B. V. Gnedenko. *Limit distributions for sums of independent random variables*. Addison-Wesley, 1954.
- [Goetschy 2011] A. Goetschy & S. E. Skipetrov. *Euclidean matrix theory of random lasers*. [Arxiv : 1104.2711](#), 2011.
- [Gomez 2005] E. Gomez, F. Baumer, A. Lange, G. Sprouse, & L. Orozco. *Lifetime measurement of the 6s level of rubidium*. [Physical Review A](#), Vol. **72**, No. 1, p. 012502, 2005.
- [González 2008] M. C. González, C. a. Hidalgo, & A.-L. Barabási. *Understanding individual human mobility patterns*. [Nature](#), Vol. **453**, No. 7196, p. 779–82, 2008.
- [Gottardo 2008] S. Gottardo, R. Sapienza, P. D. García, A. Blanco, D. S. Wiersma, & C. López. *Resonance-driven random lasing*. [Nature Photonics](#), Vol. **2**, No. 7, p. 429–432, 2008.
- [Gouedard 1993] C. Gouedard, D. Husson, C. Sauteret, F. Auzel, & A. Migus. *Generation of spatially incoherent short pulses in laser-pumped neodymium stoichiometric crystals and powders*. [JOSA B](#), Vol. **10**, No. 12, p. 2358–2363, 1993.
- [Graaff 2000] R. Graaff & J. J. Ten Bosch. *Diffusion coefficient in photon diffusion theory*. [Optics letters](#), Vol. **25**, No. 1, p. 43–5, 2000.
- [Grison 1991] D. Grison, B. Lounis, C. Salomon, J. Y. Courtois, & G. Grynberg. *Raman Spectroscopy of Cesium Atoms in a Laser Trap*. [Europhysics Letters \(EPL\)](#), Vol. **15**, No. 2, p. 149–154, 1991.
- [Groom 2002] D. Groom. *Cosmic rays and other nonsense in astronomical CCD imagers*. [Experimental Astronomy](#), Vol. **14**, No. 1, p. 45–55, 2002.
- [Grynberg 1993] G. Grynberg & C. Cohen-Tannoudji. *Central resonance of the Mollow absorption spectrum : physical origin of gain without population inversion*. [Optics communications](#), Vol. **96**, No. 1-3, p. 150–163, 1993.
- [Guerin 2008] W. Guerin, F. Michaud, & R. Kaiser. *Mechanisms for Lasing with Cold Atoms as the Gain Medium*. [Physical Review Letters](#), Vol. **101**, No. 9, p. 1–4, 2008.
- [Guerin 2009] W. Guerin, N. Mercadier, D. Brivio, & R. Kaiser. *Threshold of a random laser based on Raman gain in cold atoms*. [Optics Express](#), Vol. **17**, No. 14, p. 359–367, 2009.

- [Guerin 2010] W. Guerin, N. Mercadier, F. Michaud, D. Brivio, L. S. Froufe-Pérez, R. Carminati, V. Ereameev, A. Goetschy, S. E. Skipetrov, & R. Kaiser. *Towards a random laser with cold atoms*. [Journal of Optics](#), Vol. **12**, No. 2, p. 024002, 2010.
- [Heavens 1961] O. Heavens. *Radiative transition probabilities of the lower excited states of the alkali metals*. [Journal of the Optical Society of America](#), Vol. **51**, No. 10, p. 1058–1061, 1961.
- [Hellwarth 1977] R. W. Hellwarth. *Generation of time-reversed wave fronts by nonlinear refraction*. [Journal of the Optical Society of America](#), Vol. **67**, No. 1, p. 1, 1977.
- [Hilico 1992] L. Hilico, C. Fabre, & E. Giacobino. *Operation of a "Cold-Atom Laser" in a Magneto-Optical Trap*. [Europhysics Letters \(EPL\)](#), Vol. **18**, No. 8, p. 685–688, 1992.
- [Hill 1982] R. Hill, H. Schuessler, & B. Zollars. *Inelastic collisions between selectively excited rubidium atoms and ground-state rubidium atoms*. [Physical Review A](#), Vol. **25**, No. 2, p. 834–841, 1982.
- [Holstein 1947] T. Holstein. *Imprisonment of resonance radiation in gases*. [Physical Review](#), Vol. **72**, No. 12, p. 1212–1233, 1947.
- [Ishimaru 1999] A. Ishimaru. *Wave Propagation and Scattering in Random Media*. John Wiley and Sons, 1999.
- [Jackson 1998] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics Third Edition*. Wiley, 1998.
- [Jackson 1999] J. D. Jackson. *Classical electrodynamics*. Wiley, 1999.
- [Jefferies 1958] J. T. Jefferies & R. N. Thomas. *The Source Function in a Non-Equilibrium Atmosphere. II. The Depth Dependence of the Source Function for Resonance and Strong Subordinate Lines*. [The Astrophysical Journal](#), Vol. **127**, p. 667, 1958.
- [Jiang 2000] X. Jiang & C. Soukoulis. *Time dependent theory for random lasers*. [Physical Review Letters](#), Vol. **85**, No. 1, p. 70–3, 2000.
- [John 1984] S. John. *Electromagnetic absorption in a disordered medium near a photon mobility edge*. [Physical Review Letters](#), Vol. **53**, No. 22, p. 2169–2172, 1984.
- [Kane 1966] Y. Kane. *Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media*. [IEEE Transactions on Antennas and Propagation](#), Vol. **14**, No. 3, p. 302–307, 1966.
- [Katori 1997] H. Katori, S. Schlipf, & H. Walther. *Anomalous Dynamics of a Single Ion in an Optical Lattice*. [Physical Review Letters](#), Vol. **79**, No. 12, p. 2221–2224, 1997.

- [Kenty 1932] C. Kenty. *On radiation diffusion and the rapidity of escape of resonance radiation from a gas*. *Physical Review*, Vol. **42**, No. 6, p. 823–842, 1932.
- [Khvolson 1890] O. Khvolson. *Grundzüge einer mathematischen Theorie der inneren Diffusion des Lichtes*. *Bull. St. Petersburg Acad. Sci.*, Vol. **33**, p. 221–256, 1890.
- [Kilin 2008] S. Y. Kilin, K. T. Kapale, & M. O. Scully. *Lasing without Inversion : Counterintuitive Population Dynamics in the Transient Regime*. *Physical Review Letters*, Vol. **100**, No. 17, p. 173601, 2008.
- [Kitching 1999] J. Kitching & L. Hollberg. *Interference-induced optical gain without population inversion in cold, trapped atoms*. *Physical Review A*, Vol. **59**, No. 6, p. 4685, 1999.
- [Klafter 1980] J. Klafter & R. Silbey. *Derivation of the Continuous-Time Random-Walk Equation*. *Physical Review Letters*, Vol. **44**, No. 2, p. 55–58, 1980.
- [Kumar 1985] P. Kumar & J. H. Shapiro. *Observation of Raman-shifted oscillation near the sodium D lines*. *Optics Letters*, Vol. **10**, No. 5, p. 226, 1985.
- [Labeyrie 2003] G. Labeyrie, E. Vaujour, C. Müller, D. Delande, C. Miniatura, D. Wilkowski, & R. Kaiser. *Slow Diffusion of Light in a Cold Atomic Cloud*. *Physical Review Letters*, Vol. **91**, No. 22, p. 223904, 2003.
- [Lagendijk 1996] A. Lagendijk & B. van Tiggelen. *Resonant multiple scattering of light*. *Physics Reports*, Vol. **270**, No. 3, p. 143–215, 1996.
- [Lawandy 1994] N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, & E. Sauvain. *Laser action in strongly scattering media*. *Nature*, Vol. **368**, No. 6470, p. 436–438, 1994.
- [Lawandy 1995] N. M. Lawandy & R. M. Balachandran. *Random laser ?* *Nature*, Vol. **373**, No. 6511, p. 204–204, 1995.
- [Lax 1968] M. Lax. *Quantum Noise. XI. Multitime correspondence between quantum and classical stochastic processes*. *Physical Review*, Vol. **172**, No. 2, p. 350–361, 1968.
- [Lepri 2007] S. Lepri, S. Cavalieri, G.-I. Oppo, & D. Wiersma. *Statistical regimes of random laser fluctuations*. *Physical Review A*, Vol. **75**, No. 6, p. 1–7, 2007.
- [Letokhov 1968] V. Letokhov. *Generation of light by a scattering medium with negative resonance absorption*. *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics*, Vol. **26**, No. 4, p. 835–840, 1968.

- [Lévy 1937] P. Lévy. *Théorie de l'addition des variables aléatoires*. Gauthier-Villars, 1937.
- [Lezama 1999] A. Lezama, S. Barreiro, & A. Akulshin. *Electromagnetically induced absorption*. *Physical Review A*, Vol. **59**, No. 6, p. 4732, 1999.
- [Liao 1977] P. Liao, N. Economou, & R. Freeman. *Two-Photon Coherent Transient Measurements of Doppler-Free Linewidths with Broadband Excitation*. *Physical Review Letters*, Vol. **39**, No. 23, p. 1473–1476, 1977.
- [Lopez-Puertas 2001] M. Lopez-Puertas & F. W. Taylor. *Non LTE radiative transfer in the atmosphere*. World Scientific, 2001.
- [Magnan 1994] C. Magnan & P. De Laverny. *A simple problem of radiative transfer by multilevel atoms*. *Astrophysics*, Vol. **37**, No. 2, p. 167–181, 1994.
- [Mandel 1995] L. Mandel & E. Wolf. *Optical coherence and quantum optics*. Cambridge University Press, 1995.
- [Mandelbrot 1982] B. B. Mandelbrot. *The Fractal geometry of nature*. W. H. Freeman, 1982.
- [Mantegna 1994] R. Mantegna & H. Stanley. *Stochastic process with ultraslow convergence to a Gaussian : the truncated Lévy flight*. *Physical Review Letters*, Vol. **73**, No. 22, p. 2946–2949, 1994.
- [Markushev 1986] V. Markushev, V. Zolin, & C. M. Briskina. *Powder laser*. *Zh. Prikl. Spektrosk.*, Vol. **45**, p. 847–850, 1986.
- [Martorell 1996] J. Martorell, R. M. Balachandran, & N. M. Lawandy. *Radiative coupling between photonic paint layers*. *Optics Letters*, Vol. **21**, No. 4, p. 239, 1996.
- [McKeever 2003] J. McKeever, A. Boca, A. D. Boozer, J. R. Buck, & H. J. Kimble. *Experimental realization of a one-atom laser in the regime of strong coupling*. *Nature*, Vol. **425**, No. 6955, p. 268–71, 2003.
- [Messiah 1999] A. Messiah. *Quantum mechanics*. Courier Dover Publications, 1999.
- [Metcalf 1999] H. J. Metcalf & P. van der Straten. *Laser cooling and trapping*, Springer, 1999.
- [Metzler 2000a] R. Metzler & J. Klafter. *Subdiffusive transport close to thermal equilibrium : From the Langevin equation to fractional diffusion*. *Physical Review E*, Vol. **61**, No. 6, p. 6308–6311, 2000.
- [Metzler 2000b] R. Metzler & J. Klafter. *The random walk's guide to anomalous diffusion : a fractional dynamics approach*. *Physics Reports*, Vol. **339**, No. 1, p. 1–77, 2000.

- [Metzler 2004] R. Metzler & J. Klafter. *The restaurant at the end of the random walk : recent developments in the description of anomalous transport by fractional dynamics*. *Journal of Physics A*, Vol. **37**, No. 31, p. R161–R208, 2004.
- [Michaud 2008] F. Michaud. *Diffusion multiple de la lumière en présence de gain dans un nuage d’atomes froids : vers un laser aléatoire*. Thèse de Doctorat, Université de Nice Sophia-Antipolis, 2008.
- [Milne 1926] E. A. Milne. *The Diffusion of Imprisoned Radiation Through a Gas*. *Journal of the London Mathematical Society*, Vol. **s1-1**, No. 1, p. 40–51, 1926.
- [Milonni 1975] P. Milonni & W. Smith. *Radiation reaction and vacuum fluctuations in spontaneous emission*. *Physical Review A*, Vol. **11**, p. 814–824, 1975.
- [Milonni 1976] P. Milonni. *Semiclassical and quantum-electrodynamical approaches in nonrelativistic radiation theory*. *Physics Reports*, Vol. **25**, No. 1, p. 1–81, 1976.
- [Molisch 1998] A. F. Molisch & B. P. Oehry. *Radiation trapping in atomic vapours*. Oxford University Press, 1998.
- [Mollow 1969] B. Mollow. *Power spectrum of light scattered by two-level systems*. *Physical Review*, Vol. **188**, No. 5, p. 1969–1975, 1969.
- [Mollow 1972] B. Mollow. *Stimulated emission and absorption near resonance for driven systems*. *Physical Review A*, Vol. **5**, No. 5, p. 2217–2222, 1972.
- [Oliver 1963] B. Oliver. *Sparkling spots and random diffraction*. *Proc. IEE*, Vol. **51**, p. 220–221, 1963.
- [Olver 2010] F. W. J. Olver, D. W. Lozier, R. F. Boisvert, & C. W. Clark. *NIST Handbook of Mathematical Functions*. Cambridge University Press, 2010.
- [Ott 1990] A. Ott, J. Bouchaud, D. Langevin, & W. Urbach. *Anomalous diffusion in “living polymers” : A genuine Levy flight ?* *Physical Review Letters*, Vol. **65**, No. 17, p. 2201–2204, 1990.
- [Ottinger 1975] C. Ottinger, R. Scheps, G. York, & A. Gallagher. *Broadening of the Rb resonance lines by the noble gases*. *Physical Review A*, Vol. **11**, No. 6, p. 1815–1828, 1975.
- [Pearson 1905] K. Pearson. *The Problem of the Random Walk*. *Nature*, Vol. **72**, No. 1865, p. 294, 1905.
- [Pereira 2004] E. Pereira, J. Martinho, & M. Berberan-Santos. *Photon trajectories in incoherent atomic radiation trapping as Lévy flights*. *Physical Review Letters*, Vol. **93**, No. 12, p. 120201, 2004.

- [Pierrat 2006] R. Pierrat, J. Greffet, & R. Carminati. *Photon diffusion coefficient in scattering and absorbing media*. *JOSA A*, Vol. **23**, No. 5, p. 1106–1110, 2006.
- [Pierrat 2007] R. Pierrat. *Propagation et émission du rayonnement en milieu diffusant. Application à l'imagerie des milieux complexes*. Thèse de Doctorat, Ecole Centrale Paris, 2007.
- [Pierrat 2009] R. Pierrat, B. Grémaud, & D. Delande. *Enhancement of radiation trapping for quasis resonant scatterers at low temperature*. *Physical Review A*, Vol. **80**, No. 1, p. 1–15, 2009.
- [Popoff 2010a] S. M. Popoff, G. Lerosey, R. Carminati, M. Fink, A. C. Boccara, & S. Gigan. *Measuring the Transmission Matrix in Optics : An Approach to the Study and Control of Light Propagation in Disordered Media*. *Physical Review Letters*, Vol. **104**, No. 10, p. 1–4, 2010.
- [Popoff 2010b] S. Popoff, G. Lerosey, M. Fink, A. C. Boccara, & S. Gigan. *Image transmission through an opaque material*. *Nature Communications*, Vol. **1**, No. 6, p. 1–5, 2010.
- [Raab 1987] E. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu, & D. Pritchard. *Trapping of Neutral Sodium Atoms with Radiation Pressure*. *Physical Review Letters*, Vol. **59**, No. 23, p. 2631–2634, 1987.
- [Rayleigh 1905] L. Rayleigh. *The Problem of the Random Walk*. *Nature*, Vol. **72**, No. 1866, p. 318, 1905.
- [Redmond 2004] S. M. Redmond, G. L. Armstrong, H.-Y. Chan, E. Mattson, A. Mock, B. Li, J. R. Potts, M. Cui, S. C. Rand, S. L. Oliveira, J. Marchal, T. Hinklin, & R. M. Laine. *Electrical generation of stationary light in random scattering media*. *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. **21**, No. 1, p. 214, 2004.
- [Rigden 1962] J. Rigden & E. Gordon. *The granularity of scattered optical maser light*. *Proc. IRE*, Vol. **50**, p. 2367–2368, 1962.
- [Rytov 1989] S. M. Rytov, Y. A. Kravtsov, & V. I. Tatarskii. *Principles of statistical radiophysics. 4. Wave propagation through random media.*, volume -1. Springer, 1989.
- [Schilke 2011] A. Schilke, C. Zimmermann, P. W. Courteille, & W. Guerin. *Distributed Feedback Lasing with Cold Atoms*. *Arxiv : 1109.6114*, 2011.
- [Schuster 1905] A. Schuster. *Radiation Through a Foggy Atmosphere*. *The Astrophysical Journal*, Vol. **21**, p. 1, 1905.
- [Sebbah 2001] P. Sebbah. *Waves and Imaging through Complex Media*. Kluwer Academic, Dordrecht, 2001.

- [Sesko 1991] D. W. Sesko, T. G. Walker, & C. E. Wieman. *Behavior of neutral atoms in a spontaneous force trap*. *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. **8**, No. 5, p. 946, 1991.
- [Solomon 1993] T. Solomon, E. Weeks, & H. Swinney. *Observation of anomalous diffusion and Lévy flights in a two-dimensional rotating flow*. *Physical Review Letters*, Vol. **71**, No. 24, p. 3975–3978, 1993.
- [Steck 2008] D. A. Steck. *Rubidium 85 D Line Data*, <http://steck.us/alkalidata>, 2008.
- [Tabosa 1991] J. Tabosa, G. Chen, Z. Hu, R. Lee, & H. Kimble. *Nonlinear spectroscopy of cold atoms in a spontaneous-force optical trap*. *Physical Review Letters*, Vol. **66**, No. 25, p. 3245–3248, 1991.
- [Taine 2008] J. Taine, E. Iacona, & J.-P. Petit. *Transferts thermiques : Introduction aux transferts d'énergie*. Dunod, 2008.
- [Takeda 2011] S. Takeda, S. Hamada, R. Peretti, C. Seassal, X. Letartre, P. Viktorovitch, & M. Obara. *Surface emitting laser based on random photonic crystals*. *Proceedings of SPIE*, Vol. **7946**, No. 1, p. 794607–794607–6, 2011.
- [Thomas 1957] R. N. Thomas. *The Source Function in a Non-Equilibrium Atmosphere. I. The Resonance Lines*. *The Astrophysical Journal*, Vol. **125**, p. 260, 1957.
- [Thomas 1960] R. N. Thomas. *The Source Function in a Non-Equilibrium Atmosphere. IV. Evaluation and Applications of the Net Radiative Bracket*. *The Astrophysical Journal*, Vol. **131**, p. 429, 1960.
- [Tsallis 1995] C. Tsallis, S. Levy, & A. Souza. *Statistical-mechanical foundation of the ubiquity of Lévy distributions in nature*. *Physical Review Letters*, 1995.
- [Türeci 2008] H. E. Türeci, L. Ge, S. Rotter, & a. D. Stone. *Strong interactions in multimode random lasers*. *Science (New York, N.Y.)*, Vol. **320**, No. 5876, p. 643–6, 2008.
- [van Albada 1991] M. van Albada, B. van Tiggelen, A. Lagendijk, & A. Tip. *Speed of propagation of classical waves in strongly scattering media*. *Physical Review Letters*, Vol. **66**, No. 24, p. 3132–3135, 1991.
- [Vanneste 2001] C. Vanneste & P. Sebbah. *Selective Excitation of Localized Modes in Active Random Media*. *Physical Review Letters*, Vol. **87**, No. 18, p. 1–4, 2001.
- [Vanneste 2007] C. Vanneste, P. Sebbah, & H. Cao. *Lasing with Resonant Feedback in Weakly Scattering Random Systems*. *Physical Review Letters*, Vol. **98**, No. 14, p. 1–4, 2007.

- [Vellekoop 2007] I. Vellekoop & A. Mosk. *Focusing coherent light through opaque strongly scattering media*. *Optics Letters*, Vol. **32**, No. 16, p. 2309–2311, 2007.
- [Viswanathan 1996] G. M. Viswanathan, V. Afanasyev, S. V. Buldyrev, E. J. Murphy, P. A. Prince, & H. E. Stanley. *Lévy flight search patterns of wandering albatrosses*. *Nature*, Vol. **381**, No. 6581, p. 413–415, 1996.
- [Vrijsen 2011] G. Vrijsen, O. Hosten, J. Lee, S. Bernon, & M. Kasevich. *Raman Lasing with a Cold Atom Gain Medium in a High-Finesse Optical Cavity*. *Physical Review Letters*, Vol. **107**, No. 6, p. 10–13, 2011.
- [Weinberg 1958] A. M. Weinberg, P. Wigner, & E. K. Wigner. *The physical theory of neutron chain reactors*. University of Chicago Press, 1958.
- [Welton 1948] T. Welton. *Some observable effects of the quantum-mechanical fluctuations of the electromagnetic field*. *Physical Review*, Vol. **74**, No. 9, p. 1157–1167, 1948.
- [Wiersma 1995] D. S. Wiersma, M. P. van Albada, & A. Lagendijk. *Random laser ?* *Nature*, Vol. **373**, No. 6511, p. 203–204, 1995.
- [Wiersma 1996] D. Wiersma & A. Lagendijk. *Light diffusion with gain and random lasers*. *Physical Review E*, Vol. **54**, No. 4, p. 4256, 1996.
- [Wiersma 2008] D. S. Wiersma. *The physics and applications of random lasers*. *Nature Physics*, Vol. **4**, No. 5, p. 359–367, 2008.
- [Wigner 1955] E. Wigner. *Lower Limit for the Energy Derivative of the Scattering Phase Shift*. *Physical Review*, Vol. **98**, No. 1, p. 145–147, 1955.
- [Williams 2001] G. Williams, S. Bayram, S. Rand, T. Hinklin, & R. Laine. *Laser action in strongly scattering rare-earth-metal-doped dielectric nanophosphors*. *Physical Review A*, Vol. **65**, No. 1, p. 1–6, 2001.
- [Wolf 1985] P. Wolf & G. Maret. *Weak localization and coherent backscattering of photons in disordered media*. *Physical Review Letters*, Vol. **55**, No. 24, p. 2696–2699, 1985.
- [Wu 1977] F. Wu, S. Ezekiel, M. Ducloy, & B. Mollow. *Observation of Amplification in a Strongly Driven Two-Level Atomic System at Optical Frequencies*. *Physical Review Letters*, Vol. **38**, No. 19, p. 1077–1080, 1977.

- [Yariv 1977] A. Yariv & D. Pepper. *Amplified reflection, phase conjugation, and oscillation in degenerate four-wave mixing*. *Optics Letters*, Vol. **1**, No. 1, p. 16, 1977.
- [Yariv 1989] A. Yariv. *Quantum Electronics*. Wiley, 1989.
- [Yoon 1999] T. H. Yoon, S. A. Pulkhin, J. R. Park, M. S. Chung, & H.-w. Lee. *Theoretical analysis of resonances in the polarization spectrum of a two-level atom driven by a polychromatic field*. *Physical Review A*, Vol. **60**, No. 1, p. 605–613, 1999.
- [Zemansky 1927] M. Zemansky. *The diffusion of imprisoned resonance radiation in mercury vapor*. *Physical Review*, Vol. **29**, No. 4, p. 513, 1927.

RÉSUMÉ

Ce manuscrit s'intéresse aux phénomènes de transport de la lumière en milieux désordonnés non linéaires, dans lesquels la lumière est susceptible de subir une redistribution en fréquence lors de la diffusion. Plus spécifiquement, il étudie la possibilité d'utiliser des vapeurs atomiques éclairées à résonance pour caractériser deux régimes singuliers de transport : le laser aléatoire et les vols de Lévy des photons.

Nous commençons par introduire un formalisme standard d'étude du transport de la lumière dans une vapeur atomique diluée. Les équations de Bloch optiques décrivent la réponse d'un atome à un champ extérieur cohérent ; elles permettent d'obtenir les sections efficaces qui caractérisent la marche aléatoire de la lumière dans le milieu. Le plus souvent, celle-ci peut être décrite par une équation de la diffusion. En présence de gain, l'équation de la diffusion prévoit un emballement de l'intensité diffuse lorsque l'échantillon dépasse une taille critique : c'est le laser aléatoire.

La seconde partie de ce manuscrit étudie par une double approche théorique et expérimentale la possibilité d'obtenir du gain dans un nuage d'atomes froids, en le soumettant à un pompage optique externe ; puis de le combiner à la diffusion pour obtenir un laser aléatoire. Dans la configuration de gain Raman hyperfin, qui ressort comme la meilleure candidate à cette fin, l'impact du rayonnement diffus piégé au sein du milieu sur l'émission de l'échantillon est clairement mis en évidence. La plupart des effets observés peuvent être expliqués par un modèle de piégeage radiatif, en l'absence de gain ; certaines observations, cependant, pourraient être attribuées à un laser aléatoire.

Dans une dernière partie, nous nous intéressons aux vapeurs atomiques chaudes dans lesquelles une redistribution en fréquence intervient du fait de l'effet Doppler y compris en milieu passif. Le phénomène crée des photons fortement désaccordés par rapport à la résonance atomique, qui sont faiblement diffusés et peuvent parcourir de longues distances dans le milieu. Ces événements rares de grande amplitude brisent les hypothèses du modèle diffusif. Nous présentons ici un dispositif qui permet une mesure directe de la distribution de la taille des pas des photons dans une vapeur chaude de rubidium. Le résultat obtenu est caractéristique d'un régime de diffusion anormale dit de vols de Lévy.

MOTS CLÉS

ATOMES FROIDS – DIFFUSION – VOLS DE LÉVY – LASER ALÉATOIRE – PIÉGEAGE RADIATIF – GAIN MOLLOW, RAMAN – MÉLANGE À 4 ONDES

ABSTRACT

In this thesis, we consider the problem of light transport in non-linear disordered media, where frequency redistribution can occur during scattering. Atomic vapors, that provide efficient resonance radiation trapping, are used as a model system to investigate the properties of two specific transport phenomena: random lasing action and Lévy flights of light.

We first introduce a standard formalism to study light transport in dilute atomic vapors. The optical Bloch equations are used to obtain the density matrix of an atom subject to an external coherent field; from this matrix, we compute the atomic polarizability and cross sections used to characterize the random walk of light in the media. Most often, transport due to this random walk is well described by a diffusion equation. When gain is added to the system, the diffusive model predicts the existence of a critical size of the sample above which the diffuse intensity strongly increases. The regime above threshold is called a random laser.

In the second part of this manuscript, we investigate both experimentally and theoretically the possibility to optically pump a cloud of cold atoms in order to obtain gain ; we then try to combine it with scattering to achieve random lasing action. Hyperfine Raman gain appears to be the best candidate for that purpose. In such a pumping configuration, radiation trapped inside the media has a strong impact on the sample emission properties. Most observations can be explained by radiation trapping alone, without any gain; some, however, could be attributed to a random laser.

In a final part, we consider hot atomic vapors where frequency redistribution during scattering occurs in the passive system due to Doppler effect. This creates photons that are strongly detuned from the atomic transition and are weakly scattered; therefore, they can cover a large distance in the sample before being re-scattered. These rare, large steps dominate transport at a macroscopic scale and the diffusion equation no longer holds. Here, we report direct measurement of the photon jump size distribution function; we show that the obtained result is characteristic of an anomalous diffusion regime, so-called Lévy flights.

KEY WORDS

COLD ATOMS – LIGHT SCATTERING – LÉVY FLIGHTS – RANDOM LASER – RADIATION TRAPPING – MOLLOW, RAMAN GAIN – 4 WAVES MIXING